TOME 11. N° 8-9. AOÛT-SEPTEMBRE 1950.

LE JOURNAL DE PHYSIQUE

ET

LE RADIUM

SUR UNE FORME NOUVELLE DE LA THÉORIE DU « CHAMP SOUSTRACTIF »

Par M. LOUIS DE BROGLIE.

Sommaire. — Après avoir fait un nouvel exposé des principes de la « théorie du champ soustractif » qu'il a récemment proposée, l'auteur montre comment on peut dans cette théorie exprimer la liaison entre les corpuscules élémentaires et les champs photoniques ou mésoniques, avec lesquels ils sont en interaction et précise certains aspects intéressants de cette interaction. Il rappelle ensuite comment on peut donner aux éléments des matrices d'interaction une forme qui soit satisfaisante du point de vue relativiste et étudie l'influence des corrections introduites ainsi sur la convergence des intégrales qui se présentent dans le calcul des énergies propres. Utilisant ensuite des calculs effectués par M. R. P. Feynman, il détermine d'une façon approximative la valeur des incréments de masse qui résultent pour l'électron de son interation avec le champ photonique et un champ mésonique : les résultats obtenus paraissent acceptables.

1. **Introduction.** — A partir de 1934, l'auteur du présent article a développé une forme nouvelle de la théorie quantique du champ électromagnétique qu'il a appelée « la Mécanique ondulatoire du photon » et qui présentait à ses yeux l'avantage de faire plus clairement rentrer la théorie quantique des champs dans le cadre général de la Mécanique ondulatoire des particules à spin. Dans cette théorie qui a été exposée dans plusieurs Ouvrages [1, 2, 3, 4], il a été attribué au photon une masse propre extrêmement petite, mais non nulle, et nous avons été ainsi conduit dès 1934 [1] à prendre comme équations de la particule de spin 1 des équations qui, mises sous forme vectorielle, sont des équations du type classique de Maxwell complétées par de petits termes contenant la masse propre. Des équations de même forme ont été ensuite proposées, en 1936, par M. Alexandre Proca, et on leur donne aujourd'hui dans la théorie du méson le nom d'équations de Proca. En somme, ces équations sont les équations générales des particules de spin 1.

Malheureusement, en ce qui concerne les interactions entre les charges électriques et le champ électromagnétique, la Mécanique ondulatoire du photon ne change rien d'essentiel aux résultats de la théorie quantique des champs et fournit en particulier une valeur infinie pour la masse propre des particules électrisées, résultat inadmissible qui embarasse les théoriciens depuis plus de 20 ans.

Récemment, nous avons repris sous une forme nouvelle une tentative (théorie du champ soustractif) faite naguère par M. Stuckelberg pour lever cette difficulté [5] et reprise ensuite de diverses façons par MM. Bopp [6], Pais [7] et Feynman [8]. Nous avons exposé nos idées nouvelles dans quatre Notes aux *Comptes rendus de l'Académie des Sciences* [9] et dans un Mémoire de *Portugaliae mathematica* [10].

Sans reprendre ici le détail des calculs donnés dans ce dernier Mémoire, nous indiquerons seulement l'une des voies qui nous ont conduit à nos conceptions nouvelles et nous insisterons plus longuement sur la manière dont se présente à notre point de vue la question de l'interaction entre les particules et les champs.

2. **Introduction de l'hypothèse du champ soustractif.** — Dans la théorie générale des particules de spin 1, on associe à toute particule de cette catégorie un champ analogue à un champ électromagnétique et représenté par deux vecteurs **E** et **H** dont les six composantes forment les six composantes distinctes d'un tenseur antisymétrique de rang 2. Dans le cas où la particule de spin 1 est un

photon, les vecteurs **E** et **H** constituent le champ électromagnétique au sens usuel.

La théorie générale de la particule de spin 1 conduit à des équations de forme maxwellienne que nous écrirons complètement plus loin [*voir* équations (15)]. Parmi celles-ci, figure l'équation

$$\operatorname{div} \mathbf{E}_{k_0} = - k_0^2 V_{k_0}, \tag{1}$$

V_{k_0} étant le potentiel scalaire correspondant à $\mathbf{E}_{k_0}$; k_0 est une constante qui caractérise la particule et qui est reliée à la masse propre m_0 par la relation

$$k_0 = \frac{2\pi}{h} m_0 c, \tag{2}$$

h étant la constante de Planck.

Dans la Mécanique ondulatoire du photon, on suppose que les photons sont des particules de spin 1 dont la masse μ_0 n'est pas rigoureusement nulle, mais seulement extraordinairement petite. La constante k_0 correspondante a une valeur extraordinairement petite $\gamma = \frac{2\pi}{h} \mu_0 c$ et, si l'on fait tendre vers zéro la valeur de γ, on retrouve à la limite pour le champ photonique les équations classiques de Maxwell. Pour le champ photonique, l'équation (1) prend donc la forme

$$\operatorname{div} \mathbf{E}_\gamma = - \gamma^2 V_\gamma. \tag{3}$$

Nous allons maintenant introduire l'hypothèse du champ soustractif. Sous sa forme la plus simple, elle consiste à admettre que tout corpuscule électrisé est en interaction à la fois avec le champ photonique de constante évanouissante γ et avec un champ mésonique de constante $k_0 \gg \gamma$. Elle comporte de plus la précision supplémentaire suivante : la création du champ photonique par le corpuscule électrisé s'exprime en lui attribuant une charge électrique au sens ordinaire du mot égale à ε, tandis que la création du champ mésonique par le corpuscule s'exprime en lui attribuant une « charge mésonique » ε_1 égale à $-\varepsilon$.

L'hypothèse du champ soustractif ainsi précisé conduit immédiatement à écrire à la place des équations (2) et (3) les suivantes :

$$\left.\begin{aligned} \operatorname{div} \mathbf{E}_{k_0} &= - k_0^2 V_{k_0} + 4\pi\varepsilon_1 \delta(\mathbf{r}) \\ &= - \varepsilon_1 k_0^2 \frac{e^{-k_0 r}}{r} + 4\pi\varepsilon_1 \delta(\mathbf{r}), \\ \operatorname{div} \mathbf{E}_\gamma &= - \gamma^2 V_\gamma + 4\pi\varepsilon\delta(\mathbf{r}) \\ &= - \varepsilon\gamma^2 \frac{e^{-\gamma r}}{r} + 4\pi\varepsilon\delta(\mathbf{r}), \end{aligned}\right\} \tag{4}$$

avec $\varepsilon_1 = -\varepsilon$. En effet, les potentiels créés ont la forme de potentiels du type Yukawa en $\frac{1}{r} e^{-k_0 r}$ ou ou $\frac{1}{r} e^{-\gamma r}$ et les derniers termes des équations (4) expriment la présence à l'origine des coordonnées de la charge qui crée le champ, car $\delta(\mathbf{r})$ est égal par définition au produit des fonctions singulières de Dirac $\delta(x)\ \delta(y)\ \delta(z)$.

En additionnant les équations (4), on obtient pour le champ total

$$\operatorname{div} \mathbf{E} = \operatorname{div}(\mathbf{E}_{k_0} + \mathbf{E}_\gamma) = 4\pi\varepsilon\left[\frac{k_0^2}{4\pi}\,\frac{e^{-k_0 r}}{r} - \frac{\gamma^2}{4\pi}\,\frac{e^{-\gamma r}}{r}\right]. \tag{5}$$

Le fait fondamental, c'est que les termes en $\delta(r)$ qui, dans les théories antérieures, sont à l'origine des valeurs infinies trouvées pour les énergies propres, ont disparu du second membre de (5).

Or l'équation (5) exprime que, pour le champ électrique total **E**, tout se passe comme si c'était un champ électrique ordinaire et comme si la particule ponctuelle chargée était remplacée par une distribution continue d'électricité de densité

$$\sigma(r) = \varepsilon\left[\frac{k_0^2}{4\pi}\,\frac{e^{-k_0 r}}{r} - \frac{\gamma^2}{4\pi}\,\frac{e^{-\gamma r}}{r}\right]. \tag{6}$$

La charge totale $\int \sigma\, dv$ est nulle comme on le vérifie aisément, mais si l'on fait tendre γ vers zéro, il reste à la limite une distribution de densité

$$\sigma(r) = \varepsilon \frac{k_0^2}{4\pi}\,\frac{e^{-k_0 r}}{r} \tag{7}$$

fortement concentrée autour de l'origine et de charge totale ε, tandis que la distribution de densité négative $-\varepsilon \frac{\gamma^2}{4\pi} \frac{e^{-\gamma r}}{\varepsilon}$ et de charge $-\varepsilon$ totale est rejetée à l'infini.

Le potentiel créé autour d'elle par la distribution (6) est

$$V(r) = \varepsilon \frac{e^{-\gamma r} - e^{-k_0 r}}{r} \simeq \varepsilon \frac{1 - e^{-k_0 r}}{r} \tag{8}$$

et cette expression correspond précisément à l'hypothèse du champ soustractif, ce qui est un intéressant recoupement.

Si l'on admet que toute l'énergie propre du corpuscule chargé provient de son énergie électrostatique, on trouve pour l'énergie propre la valeur *finie*

$$W_0 = \frac{\varepsilon^2}{4}\,\frac{(k_0 - \gamma)^2}{k_0 + \gamma} \simeq \frac{\varepsilon^2}{4} k_0. \tag{9}$$

Les résultats qui précèdent peuvent être généralisés. Nous avons, en effet, jusqu'ici considéré seulement des corpuscules électrisés et nous avons limité à deux le nombre des champs qui interviennent dans l'interaction. Il est facile de s'affranchir de ces restrictions.

Pour cela, nous considérons un corpuscule de spin 1 en interaction avec les champs de particules de spin 1 que, par définition, nous nommerons des «mésons», réservant ainsi cette appellation aux particules de spin 1 de masse très supérieure à

celle de l'électron [1] Soient $\varepsilon_1, \varepsilon_2, \ldots, \varepsilon_n$ les « charges » du corpuscule par rapport à ces divers champs. Si l'on reprend la théorie développée ci-dessus, on voit aisément que, pour que le corpuscule ait une énergie propre finie, c'est-à-dire pour que les termes en $\delta(r)$ s'éliminent, il faut avoir

$$\sum_{1}^{n} {}_i\, \varepsilon_i = 0. \tag{10}$$

On obtient alors pour la densité σ précédemment définie

$$\sigma(r) = -\sum_{1}^{n} {}_i \frac{\varepsilon_i}{4\pi} k_{0i}^2 \frac{e^{-k_{0i} r}}{r}, \tag{11}$$

la charge totale correspondante étant nulle.

Le potentiel $V(r)$ créé autour d'elle par cette distribution est

$$V(r) = \sum_{1}^{n} {}_i\, \varepsilon_i \frac{e^{-k_{0i} r}}{r} \tag{12}$$

et l'énergie propre W_0 du corpuscule chargé est donnée par

$$\begin{aligned} W_0 = {} & \frac{1}{2} \int \sum_{1}^{n} {}_i\, \varepsilon_i \frac{e^{-k_{0i} r}}{r} \\ & \times \left(-\sum_{1}^{n} {}_i\, \varepsilon_i \frac{k_{0i}^2}{4\pi} \frac{e^{-k_{0i} r}}{r} \right) 4\pi r^2\, dr \\ = {} & -\frac{1}{4} \sum_{1}^{n} {}_i \sum_{1}^{n} {}_j\, \varepsilon_i \varepsilon_j \frac{k_{0i}^2 + k_{0j}^2}{k_{0i} + k_{0j}}. \end{aligned} \tag{13}$$

Dans le cas où le corpuscule est électrisé, l'une des charges ε_i est une charge électrique au sens ordinaire du mot et la partie correspondante de la densité σ est rejetée vers l'infini. Si, de plus, il y a seulement intervention de deux champs, un champ photonique et un champ mésonique, on posera

$$n = 2, \quad \varepsilon_1 = -\varepsilon_2 = \varepsilon, \quad k_{01} = \gamma, \quad k_{02} = k_0 \tag{14}$$

et l'on retrouvera les formules (6), (8) et (9).

La théorie ainsi généralisée paraît susceptible d'importantes applications à l'interprétation des forces nucléaires. Nous avons donné quelques indications à ce sujet à la fin de notre Mémoire de *Portugaliae Mathematica* [10] et dans la dernière de nos Notes aux *Comptes rendus* citées en [9]. Malgré leur intérêt, nous n'insisterons pas ici sur ces prolongements possibles de nos conceptions, parce que notre but dans cet article est de préciser la question de l'interaction entre les corpuscules de spin $\frac{1}{2}$ et les rayonnements.

3. La théorie précédente réalise une sorte de fusion des champs créés autour d'eux par les corpuscules chargés. — La théorie précédente réalise une sorte de fusion en un champ unique des divers champs mésoniques qui y interviennent (le champ photonique pouvant être considéré comme un champ mésonique particulier, avec cette seule différence que sa constante de masse γ est évanouissante). Cette caractéristique essentielle de la théorie apparaît déjà clairement quand on introduit le champ soustractif à l'aide du formalisme multitemporel de Dirac, Fock et Podolski, comme nous l'avons fait dans le paragraphe 2 de notre article de *Portugaliae Mathematica* [elle est déjà contenue dans la formule (5) de cet article]. Nous allons retrouver cette conclusion par une autre voie.

Considérons un corpuscule de spin $\frac{1}{2}$ en interaction avec n champs et écrivons les équations maxwelliennes des n champs complétées par les termes qui expriment la création des champs par la présence du corpuscule de charges $\varepsilon_1, \varepsilon_2, \ldots, \varepsilon_n$ situé au point R et animé de la vitesse v.

$$\left.\begin{aligned} & a. \quad -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{H}_i}{\partial t} = \operatorname{rot} \mathbf{E}_i, \\ & b. \quad \operatorname{div} \mathbf{H}_i = 0, \\ & c. \quad \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{E}_i}{\partial t} = +k_{0i}^2 \mathbf{A}_i + \operatorname{rot} \mathbf{H}_i - 4\pi\varepsilon_i \frac{\mathbf{v}}{c} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}), \\ & d. \quad \operatorname{div} \mathbf{E}_i = -k_{0i}^2 V_i + 4\pi\varepsilon_i \delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}), \end{aligned}\right\} \tag{15}$$

avec $i = 1, \ldots, n$. D'après l'hypothèse du champ soustractif généralisée, nous avons entre les ε_i la relation (10).

Si nous supposons que le champ d'indice i n'agit que sur la charge de même indice, un raisonnement classique en théorie de Maxwell fournit aisément l'expression suivante de la densité d'énergie

$$w = \sum_{1}^{n} {}_i \frac{1}{8\pi} [E_i^2 + H_i^2 + k_{0i}^2 (A_i^2 + V_i^2)], \tag{16}$$

puis on trouve pour l'énergie totale en régime permanent

$$H = \int w \, d\tau = \frac{1}{2} \int \sum_{1}^{n} {}_i\, \varepsilon_i \left[V_i + \frac{\mathbf{v}}{c} \cdot \mathbf{A}_i \right] \delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}) \, d\tau. \tag{17}$$

Transposé dans la théorie quantique, ce résultat conduit à prendre comme hamiltonien d'interaction entre le corpuscule et le champ l'expression [2]

$$H^{(1)} = \sum_{1}^{n} {}_i\, \varepsilon_i [V_i . 1 - \mathbf{A}_i . \alpha] \delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}), \tag{18}$$

[1] Remarquons qu'avec cette convention, le méson μ ordinaire des rayons cosmiques ne paraît pas rentrer dans la catégorie des mésons telle que nous les définissons, puisqu'il est maintenant admis que le spin des mésons μ est égal à $\frac{1}{2}$.

[2] Dans les formules (44), (48), (51), (52) et (60) de [10], il faut changer le signe du terme en $\mathbf{A}.\alpha$.

les matrices opérateurs 1 et $-c\alpha$ correspondant dans la théorie du corpuscule de spin $\frac{1}{2}$ (théorie de Dirac) à la densité de charge et à la densité de courant. L'expression (18) fournit pour la valeur de l'énergie mutuelle de deux charges a et b immobiles placées à la distance R_{ab} l'une de l'autre

$$W(R_{ab}) = \sum_{i}^{n} \varepsilon_i^{(a)} \varepsilon_i^{(b)} \frac{e^{-k_{0i} R_{ab}}}{R_{ab}}, \qquad (19)$$

et l'on trouve ainsi pour l'énergie propre du corpuscule, égale à $\frac{1}{2} \lim_{R_{ab} \to 0} W(R_{ab})$ une valeur infinie qui est inacceptable.

Comment se fait-il alors que nous ayons obtenu dans le paragraphe précédent une valeur finie de l'énergie propre du corpuscule ? C'est ce que nous avons implicitement admis que sur chaque charge ε_i agit non pas le seul champ $\mathbf{E}_i$, mais le champ total $\mathbf{E} = \sum_{i}^{n} \mathbf{E}_i$. En admettant cette hypothèse, reprenons le raisonnement de type classique qui conduit des équations (15) à la formule (16). Nous trouvons qu'en vertu de la relation (10), le terme $\sum_{i}^{n} \varepsilon_i \mathbf{v}.\mathbf{E}$ qui dans la conception classique représenterait le travail par unité de temps est nul, mais nous voyons apparaître des termes de la forme $-\sum_{i}^{n} k_{0i}^2 \mathbf{A}_i.\mathbf{E}$ qui peuvent être interprétés comme représentant un travail du champ ignoré de la théorie habituelle. Il y a là une sorte de réinterprétation des termes en k_0^2 dans les équations maxwelliennes de la particule de spin 1, car on les considère maintenant comme définissant des densités de charge et de courant. Alors le raisonnement qui conduit à la formule (17) nous donne une formule qui, dans le cas statique, se réduira à

$$\int \frac{E^2}{8\pi} d\tau = -\frac{1}{2} \int \sum_{i}^{n} \frac{k_{0i}^2}{4\pi} V_i \sum_{j}^{n} V_j \, d\tau. \qquad (20)$$

Le premier membre peut être considéré comme l'énergie globale du champ statique total $\mathbf{E}$ qui se comporte comme un champ classique (de masse propre nulle), tandis que l'intégrale du second membre, où l'on posera $V_i = \varepsilon_i \frac{e^{-k_{0i} r}}{r}$, nous ramène à la valeur finie (13) de l'énergie propre.

Nous apercevons bien ainsi qu'en ce qui conerne du moins le champ créé par un corpuscule, ce formalisme substitue à l'ensemble des n champs de masse propre non nulle un champ global unique de masse propre nulle avec réinterprétation comme densités de charge et de courant des termes en k_0^2 dans les équations maxwelliennes des champs. Ainsi se trouve opérée une sorte de fusion des divers champs de constantes de masse k_{0i} et nous devons maintenant examiner ce qui en résulte pour l'interaction entre le corpuscule et les ondes photoniques ou mésoniques.

4. Interaction entre un corpuscule de spin $\frac{1}{2}$ et les ondes photoniques ou mésoniques. — Nous considérons toujours un corpuscule de spin $\frac{1}{2}$ en présence de n champs de constantes de masse k_{01}, k_{02}, ..., k_{0n}. Il faut distinguer les champs « liés » créés autour du corpuscule par l'action de ses charges ε_i et les champs « libres » formés par une superposition d'ondes planes monochromatiques. Nous affecterons les champs liés de l'indice ε et les champs libres de l'indice zéro.

Comme le champ de Coulomb dans la théorie quantique des champs usuelle, les champs liés ne sont pas quantifiés. Dans un système de référence où le corpuscule est au repos, le champ $\mathbf{E}_\varepsilon$ dérive du potentiel (12) maintenant nommé V_ε par la formule $\mathbf{E}_\varepsilon = -\operatorname{grad} V_\varepsilon$. Dans un système de référence où le corpuscule est en mouvement avec la vitesse $\mathbf{v}$ les potentiels V_ε et $\mathbf{A}_\varepsilon$, ainsi que les champs $\mathbf{E}_\varepsilon$ et $\mathbf{H}_\varepsilon$, se déduisent des valeurs dans le système de repos par les formules de transformation relativiste bien connues.

Quant aux champs libres, ils constituent les ondes planes monochromatiques qui, pour chaque sorte de champ, transportent les particules correspondantes : ils obéissent séparément aux équations du type (15). Ainsi, pour le champ photonique, de constante de masse $\gamma \sim 0$, les champs libres sont les champs électromagnétiques associés aux ondes électromagnétiques qui transportent les photons. Ces champs libres sont essentiellement quantifiés. Quand le corpuscule change d'état quantique, il peut y avoir émission et absorption d'une particule de constante de masse k_{01} ou k_{02} ou... Sous réserve d'un raffinement relativiste que nous introduirons au paragraphe suivant, les éléments de matrice correspondant aux transitions quantiques d'émission ou d'absorption sont les mêmes qu'en Mécanique ondulatoire du photon, mais avec substitution au facteur $\delta(\mathbf{r} - \mathbf{R})$ du facteur $\sigma(\mathbf{r} - \mathbf{R})$ défini par la formule (11).

Pour le voir, supposons que le corpuscule de spin $\frac{1}{2}$ soit plongé dans une onde plane monochromatique, transversale ou longitudinale, de vecteur de propagation $\mathbf{k}$ avec $|\mathbf{k}|^2 = k^2 - k_0^2$. L'hamil-

tonien du système total sera

$$H = \frac{1}{8\pi}\int (E_\xi^2 + H_\xi^2)\,d\tau$$
$$+ \frac{1}{8\pi}\int [E_0^2 + H_0^2 + k_0^2(V_0^2 + A_0^2)]\,d\tau$$
$$+ \frac{1}{2}\int \left(V_0 + \frac{\mathbf{v}}{c}\cdot\mathbf{A}_0\right)\sigma\,d\tau. \quad (21)$$

Le premier terme qui, dans le système où le corpuscule est immobile, se réduit à

$$\frac{1}{8\pi}\int E_\xi^2\,d\tau = \frac{1}{2}\int V_\xi \sigma\,d\tau \quad (22)$$

n'est pas autre chose que l'énergie propre du corpuscule précédemment étudiée. Le second terme de (22) représente l'énergie du champ libre. Quant au troisième terme

$$H^{(1)} = \frac{1}{2}\int \left(V_0 + \frac{\mathbf{v}}{c}\cdot\mathbf{A}_0\right)\sigma\,d\tau, \quad (23)$$

nous devons, du point de vue quantique, le transformer en un hamiltonien d'interaction entre le corpuscule et l'onde en tenant compte de la correspondance $\mathbf{v} \sim -c\boldsymbol{\alpha}$. Nous obtenons alors, en désignant par $\Psi^{(1)}$ et $\Psi^{(2)}$ les fonctions d'onde du corpuscule dans son état initial et dans son état final, l'expression suivante de l'élément de matrice correspondant à cette transition

$$\iint \Psi^{(2)*}(\mathbf{R}, t)\,[V_0(\mathbf{r}, t) - \mathbf{A}_0(\mathbf{r}, t).\alpha]$$
$$\times \Psi^{(1)}(\mathbf{R}, t)\,\sigma(\mathbf{R} - \mathbf{r})\,d\mathbf{R}\,d\mathbf{r}, \quad (24)$$

où σ est la densité (11). C'est bien là, comme nous le verrons plus en détail sur un cas particulier au paragraphe 5, la forme des éléments d'interaction considérés par la Mécanique ondulatoire du photon, mais avec substitution de $\sigma(\mathbf{r} - \mathbf{R})$ à $\delta(\mathbf{r} - \mathbf{R})$.

Nous devons maintenant examiner une difficulté que le schéma précédent paraît soulever. Supposons qu'il existe dans la nature n sortes de particules de spin 1 en y comprenant les photons auxquels nous réserverons, quand ils interviennent, l'indice 1. En principe, un corpuscule de spin $\frac{1}{2}$ peut être en interaction avec ces n sortes de champs, mais il peut arriver qu'avec certains d'entre eux l'interaction soit nulle si la charge ε_i correspondante est nulle. Par exemple, si la charge « électrique » ε_1 est différente de zéro, le corpuscule sera électrisé et entrera en interaction avec le champ photonique : si, au contraire, ε_1 est nulle, le corpuscule sera neutre et n'interagira pas avec le champ photonique. Ceci sera le cas par exemple pour les neutrons et, comme la condition $\sum_1^n \varepsilon_i = 0$ doit toujours être satisfaite, nous pouvons conclure, comme je l'ai déjà signalé, qu'il doit exister au moins deux sortes de particules de spin 1 autres que les photons.

Voici maintenant la difficulté qui a été annoncée : Si une onde électromagnétique, c'est-à-dire photonique, vient frapper un neutron, comme dans l'expression (24), σ n'est pas nulle même quand $\varepsilon_1 = 0$, l'élément de matrice (24) n'est pas nul en principe et il semble en résulter qu'un corpuscule neutre doit pouvoir émettre, absorber ou diffuser les ondes électromagnétiques, conclusion paradoxale. Nous allons montrer que, du moins pour les ondes électromagnétiques de longueurs d'onde usuelles, il n'en est rien.

En effet, considérons une onde électromagnétique plane monochromatique de vecteur de propagation $\mathbf{k}$ dont nous prendrons la direction de propagation comme axe des z. Nous aurons $|\mathbf{k}| \simeq k$ et les potentiels de l'onde seront proportionnels à $e^{ik(ct-z)}$. Donc l'élément de matrice (24), compte tenu de la forme de $\sigma(\mathbf{r} - \mathbf{R})$ donnée par (11), contiendra le facteur

$$\iint \sigma\, e^{-ikz}\, 2\pi r^2 \sin\theta\, d\theta\, dr$$
$$= -\sum_1^n \varepsilon_i \frac{k_{0i}^2}{2}\int_0^\infty r\,dr \int_0^\pi d\theta\, e^{-k_{0i}z}\, e^{-ikz\cos\theta}\sin\theta$$
$$= -\sum_1^n \varepsilon_i \frac{k_{0i}^2}{k_{0i}^2 + k^2}. \quad (25)$$

Supposons d'abord le corpuscule électrisé ($\varepsilon_1 \neq 0$, $k_{01} = \gamma \sim 0$). Le premier terme de la somme (25) est négligeable. De plus, si comme nous le supposons toujours les masses des particules de spin 1 autres que les photons sont de l'ordre « mésonique », les k_{0i} pour $i \geq 2$ sont toujours au moins 10^4 fois plus grands que k, même si le rayonnement incident est un rayonnement γ dur. Le facteur (25) a donc pour valeur

$$-\sum_2^n \varepsilon_i \frac{k_{0i}^2}{k_{0i}^2 + k^2} \simeq -\sum_2^n \varepsilon_i = \varepsilon_1. \quad (26)$$

Il en résulte que, sauf pour des longueurs d'onde de l'ordre des dimensions nucléaires, l'onde électromagnétique agit sur le corpuscule électrisé comme s'il avait seulement la charge ε_1, ce qui est conforme aux idées habituelles.

Mais supposons maintenant que le corpuscule soit neutre. Alors la constante de masse très petite $k_{01} = \gamma$ ne figure pas dans la somme (25) puisque $\varepsilon_1 = 0$ et, comme dans cette somme tous les k_{0i} sont avec les rayonnements usuels beaucoup plus grands que k, elle se réduit à $-\sum_1^n \varepsilon_i$, ce qui est nul d'après (10). Donc, sauf pour des ondes dont la longueur d'onde serait de l'ordre des dimensions nucléaires, il n'y a pas d'interactions entre un corpuscule neutre et une onde électromagnétique.

Nous retrouvons donc dans les deux cas les conceptions auxquelles nous sommes habitués : c'est seulement dans le cas des rayonnements dont la longueur d'onde serait de l'ordre des dimensions nucléaires qu'il pourrait en être autrement.

Nous pouvons retrouver les résultats précédents d'une façon plus intuitive. Bornons-nous au cas où le corpuscule n'a que deux charges différentes de zéro. Il y a alors deux distributions continues de charges associées au corpuscule dont les densités sont respectivement $-\varepsilon_1 \frac{k_{01}^2}{4\pi} \frac{e^{-k_{01}r}}{r}$ et $-\varepsilon_2 \frac{k_{02}^2}{4\pi} \frac{e^{-k_{02}r}}{r}$, les charges totales correspondantes étant $-\varepsilon_1$ et $-\varepsilon_2$. Si le corpuscule est électrisé ($k_{01} \sim 0$), la première distribution de charge est pratiquement rejetée à l'infini et n'agit pas sur une onde de dimensions finies. Au contraire, la seconde distribution de charge totale $-\varepsilon_2 = \varepsilon_1$ égale à la charge électrique est concentrée dans un domaine dont les dimensions sont de l'ordre de 10^{-13} cm et, comme la longueur d'onde de l'onde électromagnétique incidente est pratiquement toujours beaucoup plus grande, l'interaction entre le corpuscule et l'onde est la même que si le corpuscule était ponctuel et portait la charge électrique ε_1.

Pour un corpuscule neutre ($\varepsilon_1 = 0$), il y a deux distributions de charges totales ε_2 et $\varepsilon_3 = -\varepsilon_2$, qui correspondent toutes deux à des champs mésoniques de grande constante k_0. Ces distributions sont concentrées dans un domaine de l'ordre nucléaire : elle agissent toutes deux sur l'onde électromagnétique, mais comme la longueur d'onde de celle-ci est pratiquement toujours très supérieure aux dimensions nucléaires, les effets des deux distributions se contrebalancent. Tout se passe comme si le corpuscule portait une charge ponctuelle égale à $-\varepsilon_2 - \varepsilon_3 = 0$; il n'y a donc pas d'effet.

Il est assez curieux de noter que, dans le cas d'un corpuscule chargé, c'est la densité mésonique $-\varepsilon_2 \frac{k_{02}^2}{4\pi} \frac{e^{-k_{02}r}}{r}$ de charge totale égale à la charge électrique ε_1 qui agit seule sur l'onde électromagnétique. Si cette onde est affectée par la présence d'un corpuscule électrisé, c'est finalement parce que la densité « photonique » de celui-ci $-\varepsilon_1 \frac{\gamma^2}{4\pi} \frac{e^{-\gamma r}}{r}$ de charge totale $-\varepsilon_1$ est inactive parce que rejetée à l'infini.

Pour compléter cette étude de l'interaction entre le corpuscule et les champs, il faudrait introduire la quantification des champs. Nous n'entreprendrons pas cette analyse, mais il nous paraît probable qu'elle conduirait à la conclusion suivante : pour les phénomènes usuels (c'est-à-dire ceux qui ne font pas intervenir les phénomènes nucléaires) et bien qu'il faille, en raison de la fusion des champs réalisés par nos conceptions, poser dans le terme d'interaction

$$V_0 = \sum_1^n {}_i V_{0i} \qquad \text{et} \qquad \mathbf{A}_0 = \sum_1^n {}_i \mathbf{A}_{0i},$$

l'interaction entre un corpuscule de spin $\frac{1}{2}$ et les champs $k_{01}, k_{02}, \ldots, k_{0n}$ est la même que si le corpuscule interagissait *séparément* avec chacun des champs libres. La question mériterait certainement d'être étudiée de près.

5. Introduction d'une correction relativiste dans l'expression (24) de l'élément de matrice. — Revenons à l'expression (24) de l'élément de matrice et supposons que la transition correspondante fasse passer le corpuscule de spin $\frac{1}{2}$ d'un état de mouvement rectiligne et uniforme à un autre état de mouvement rectiligne et uniforme [3] avec absorption d'une particule de champ. Dans l'expression (24), $V(\mathbf{r}, t)$ et $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$ sont les composantes du quadrivecteur d'univers potentiel et ont la forme

$$A_i(\mathbf{r}, t) = A_i^{(0)} e^{i[kct - \mathbf{k}.\mathbf{r}]}. \qquad (27)$$

Les fonctions $\Psi^{(1)}(\mathbf{R}, t)$ et $\Psi^{(2)}(\mathbf{R}, t)$ sont les fonctions d'onde (du type de Dirac) qui décrivent l'état initial et l'état final du corpuscule : leurs composantes sont de la forme

$$\left.\begin{aligned} \Psi_k^{(1)}(\mathbf{R}, t) &= a_k^{(1)} e^{i[K_1ct - \mathbf{K}_1.\mathbf{R}]}, \\ \Psi_k^{(2)}(\mathbf{R}, t) &= a_k^{(2)} e^{i[K_2ct - \mathbf{K}_2.\mathbf{R}]}, \end{aligned}\right\} \qquad (28)$$

où les indices k sont ceux de la théorie de Dirac. On a

$$\left.\begin{aligned} K_1^2 &= |\mathbf{K}_1|^2 + \frac{4\pi^2}{h^2} m_0^2 c^2, \\ K_2^2 &= |\mathbf{K}_2|^2 + \frac{4\pi^2}{h^2} m_0^2 c^2, \end{aligned}\right\} \qquad (29)$$

m_0 étant la masse propre du corpuscule chargé.

Le vecteur $\mathbf{K} = \mathbf{K}_1 - \mathbf{K}_2$ mesure, au facteur $\frac{2\pi}{h}$ près, la variation de la quantité de mouvement du corpuscule lors de la transition et le scalaire $K = K_1 - K_2$ mesure de même au facteur $\frac{2\pi}{hc}$ près, la variation correspondante de l'énergie. Malgré l'existence des relations (29), il n'y a aucune relation générale entre K et $\mathbf{K}$.

Si l'on a affaire non à l'absorption, mais à l'émission d'une particule de spin 1, il faut dans l'expression (24) remplacer V et $\mathbf{A}$ par les grandeurs complexes conjuguées V^* et $\mathbf{A}^*$. La conservation de la quantité de mouvement qui a toujours lieu

(3) Dans la théorie quantique, il n'y a pas lieu de considérer un mouvement accéléré, un tel mouvement se réduisant à une suite de transitions quantiques entre états de mouvements rectilignes et uniformes.

donne $\mathbf{K} = \pm \mathbf{k}$ suivant qu'il y a absorption ou émission, de sorte que l'on a, dans les deux cas,

$$|\mathbf{K}|^2 = k^2. \tag{30}$$

Mais on n'a pas $K = k$, car la conservation de l'énergie n'a pas lieu en général dans une transition élémentaire.

En introduisant dans (24), l'expression (27) des potentiels, on trouve que la composante A_j apparaît dans le terme d'interaction par le facteur

$$A_j^{(0)} e^{i(kct - \mathbf{k}.\mathbf{R})} \int e^{-ik(\mathbf{r}-\mathbf{R})} \sigma(\mathbf{r} - \mathbf{R})\, d\mathbf{r}. \tag{31}$$

En prenant alors $\mathbf{r} - \mathbf{R}$ comme variable d'intégration, on voit que l'intégrale précédente est égale à $-\sum_1^n \varepsilon_i \frac{k_{0i}^2}{k_{0i}^2 + |\mathbf{k}|^2}$. Dans le cas simple d'un corpuscule de charge électrique ε qui n'est en interaction qu'avec le champ photonique et un seul champ mésonique de constante de masse k_0, l'expression précédente se réduit à

$$\varepsilon \frac{k_0^2}{k_0^2 + |\mathbf{k}|^2} = \varepsilon \frac{k_0^2}{k_0^2 + |\mathbf{K}|^2}$$

et l'élément de matrice s'écrit

$$\varepsilon \int \Psi^{(2)*}(\mathbf{R}, t)$$
$$\times [V(\mathbf{R}, t).1 - \mathbf{A}(\mathbf{R}, t).\alpha] \Psi^{(2)}(\mathbf{R}, t) \frac{k_0^2}{k_0^2 + |\mathbf{K}|^2} d\mathbf{R}. \tag{32}$$

L'élément de matrice est donc le même que celui qu'emploie la théorie quantique des champs usuelle, mais avec introduction sous l'intégrale du facteur $\frac{k_0^2}{k_0^2 + |\mathbf{K}|^2}$.

Comme l'élément de matrice utilisé par la théorie quantique des champs a une variance relativiste correcte, il faudrait, pour que l'expression (32) soit satisfaisante du point de vue relativiste, que le facteur de correction introduit par notre raisonnement soit un invariant. Or ce facteur de correction sous sa forme générale

$$-\sum_1^n \varepsilon_i \frac{k_{0i}^2}{k_{0i}^2 + |\mathbf{k}|^2} = -\sum_1^n \varepsilon_i \frac{k_{0i}^2}{k_{0i}^2 + |\mathbf{K}|^2}. \tag{33}$$

n'est visiblement pas un invariant relativiste, puisque les ε_i et les k_{0i} sont des invariants, tandis que $|\mathbf{K}|$ n'est pas un invariant. Dans notre Mémoire [10] de *Portugaliae Mathematica*, nous avons donné un raisonnement détaillé, pour montrer qu'on doit, pour obtenir une variance relativiste correcte, remplacer $|\mathbf{K}|$ dans l'expression (33) par $|\mathbf{K}|^2 - K^2$. D'ailleurs cette modification est négligeable dans le cas « quasi statique » où le rapport $\frac{K}{|\mathbf{K}|}$ toujours inférieur à 1, est négligeable devant l'unité. Naturellement, dans le cas général, le même raisonnement amène à remplacer le facteur (33) par le facteur

$$-\sum_1^n \varepsilon_i \frac{k_{0i}^2}{k_{0i}^2 + |K|^2 - K^2}. \tag{34}$$

L'invariance relativiste du facteur ainsi modifié est évidente car, $\mathbf{K}$ et K étant respectivement la différence des quantités de mouvement et des énergies entre l'état initial et l'état final du corpuscule, sont les composantes d'un quadrivecteur d'espace-temps dont la norme $K^2 - |\mathbf{K}|^2$ est invariante.

Indiquons maintenant comment l'introduction des facteurs (33) et (34) fait converger les intégrales divergentes que l'on rencontre en théorie quantique des champs quand on calcule la masse propre d'un électron. Nous nous placerons dans le cas simple où l'on suppose l'électron en interaction avec le champ photonique et un seul champ mésonique de constante de masse k_0. On sait que, dans le calcul habituel de la portion de la masse propre de l'électron qui provient de l'émission et de la réabsorption virtuelles de photons (ou de mésons), on aboutit à des intégrales de la forme $\int_0^\infty [\ldots]\, d|\mathbf{k}|$, qui sont divergentes. Pour éviter ces divergences, on introduit souvent un procédé arbitraire de coupure qui consiste à limiter l'intégration dans l'espace des $\mathbf{k}$ à une sphère de rayon K_M et à écrire $\int_0^{K_M}$ au lieu de $\int_0^\infty$. Ce procédé de coupure est artificiel et sans justification théorique.

Si l'on reprend ce calcul dans la théorie que nous développons, en employant le facteur (33), on est amené à des intégrales de la forme

$$\int_0^\infty [\ldots] \left(\frac{k_0^2}{k_0^2 + |\mathbf{k}|^2}\right)^2 d|\mathbf{k}|,$$

qui sont convergentes. Le fait que le facteur (33) figure au carré sous l'intégrale, s'explique par le fait que le processus d'émission et de réabsorption virtuelles s'opère en deux étapes. Si l'on compare la forme des intégrales ainsi obtenues avec celles qu'on utilisait auparavant dans la théorie quantique des champs en employant le procédé de coupure, on voit que l'on doit obtenir ici des résultats voisins de ceux qu'on obtiendrait avec l'ancien procédé de coupure en prenant K_M de l'ordre de k_0.

Cependant les considérations précédentes ne sont pas réellement exactes. En effet, pour les grandes valeurs de $\mathbf{k}$, le corpuscule est fortement mis en mouvement par l'émission ou l'absorption de la particule de champ. Le rapport $\frac{K}{|\mathbf{K}|}$, n'étant pas alors négligeable, c'est l'expression (54) et non l'expression (53) qu'il faut employer et le facteur qui s'introduit dans les intégrales est $\left(\frac{k_0^2}{k_0^2 + |\mathbf{k}|^2 - K^2}\right)^2$.

Nous allons voir que ceci diminue la convergence des intégrales, mais sans la supprimer.

En effet, quand un corpuscule de masse propre m_0 primitivement au repos absorbe un quantum à l'onde de vecteur de propagation **k**, on a pour la transition effectuée

$$\mathbf{K} = \mathbf{k}, \qquad K = \sqrt{|\mathbf{k}|^2 + \frac{4\pi^2}{h^2} m_0^2 c^2} - \frac{2\pi}{h} m_0 c. \quad (35)$$

Pour $\mathbf{k} > \frac{2\pi}{h} m_0 c$ on a approximativement

$$K \simeq |\mathbf{k}| - \frac{2\pi}{h} m_0 c \quad (36)$$

et par suite,

$$1 - \frac{K^2}{|\mathbf{k}|^2} \simeq \frac{4\pi}{h} \frac{m_0 c}{|\mathbf{k}|}. \quad (37)$$

Comme $k_0 = \frac{2\pi}{h} m_{k_0} c$ où m_{k_0} est la masse propre de la particule de constante de masse k_0, on trouve

$$\left.\begin{aligned} \frac{k_0^2}{k_0^2 + |\mathbf{k}|^2 - K^2} = \frac{1}{1 + 2\frac{m_0}{m_{k_0}} \frac{|\mathbf{k}|}{k_0}} \to \frac{m_{k_0}}{2m_0} \frac{k_0}{|\mathbf{k}|} \\ \text{pour } |\mathbf{k}| \to \infty. \end{aligned}\right\} \quad (38)$$

Comme c'est le carré de l'expression (38) qui figure sous les intégrales, on voit donc que pour les grandes valeurs de $|\mathbf{k}|$, ce facteur décroitra comme $|\mathbf{k}|^{-2}$: la convergence sera assurée, mais moins rapidement que si l'on avait employé l'expression non corrigée (33).

Si l'on compare de nouveau les intégrales obtenues avec celles que fournit dans la théorie quantique des champs le procédé de coupure, on voit que finalement on doit obtenir ici des résultats voisins de ceux fournis par l'ancien procédé de coupure quand on prend K_M de l'ordre de $\frac{m_{k_0}}{2m_0} k_0$. Nous allons en nous appuyant sur ce résultat examiner de plus près ce que fournit le calcul de la masse propre de l'électron dans la nouvelle théorie.

6. **La masse propre de l'électron.** — Nous désignerons par $-e$ la charge de l'électron et par m_0 sa masse propre expérimentale, c'est-à-dire celle qu'on peut déterminer par des mesures mécaniques. Nous admettrons toujours l'hypothèse, simple (mais non absolument nécessaire dans notre théorie), que l'électron est en interaction avec deux champs seulement : le champ des photons et un champs de mésons de constante de masse k_0. Le potentiel qui entoure l'électron a alors la forme

$$V(r) = -e \frac{e^{-\gamma r} - e^{-k_0 r}}{r} \simeq -e \frac{1 - e^{-k_0 r}}{r}. \quad (39)$$

On admet souvent aujourd'hui qu'une partie de la masse de l'électron a une origine inconnue, non électromagnétique. Il semble naturel dans notre théorie d'écarter cette hypothèse et de chercher à interpréter la totalité de la masse propre de l'électron à l'aide de nos conceptions nouvelles. La première partie la plus importante de la masse propre proviendrait de l'énergie du champ lié défini par (39) et serait donnée d'après la formule (9) par l'expression

$$m_\varepsilon = \frac{1}{c^2} \frac{e^2}{4} k_0. \quad (40)$$

Une autre partie de la masse aurait pour origine l'émission et la réabsorption virtuelles par l'électron de photons ou de mésons longitudinaux ou transversaux : en séparant ce qui est dû aux photons et ce qui est dû aux mésons, on pourrait écrire cet incrément de masse sous la forme $\Delta m_\gamma + \Delta m_{k_0}$. Si nous supposons, ce que les calculs qui vont suivre paraissent justifier, que Δm_γ et Δm_{k_0} sont très petits devant m_ε, nous pourrons écrire approximativement

$$m_0 \simeq \frac{1}{c^2} \frac{e^2}{4} k_0, \quad (41)$$

d'où nous tirons pour la masse m_{k_0} des mésons qui interviennent ici, la valeur approchée que nous avons déjà donnée précédemment [9, *a*]

$$m_{k_0} = 4.137\, m_0 = 548\, m_0. \quad (42)$$

Il faut maintenant chercher à évaluer les incréments de masse que nous nommons Δm_γ et Δm_{k_0}. Un calcul de ce genre a été effectué par M. Feynman dans l'un de ses Mémoires [11] en employant les formules de la théorie quantique des champs rendues convergentes par le procédé de coupure. En principe, il nous faudrait ici reprendre tous les calculs de M. Feynman en étendant toutes les intégrales de 0 à ∞, mais en introduisant sous les signes somme le facteur de convergence étudié précédemment. Les calculs sont compliqués et n'ont pas été effectués, mais il semble, d'après ce qui a été dit à la fin du dernier paragraphe, que l'on doive obtenir une valeur approchée de leurs résultats en utilisant les formules de Feynman et en y remplaçant la limite supérieure des intégrales, qui dans nos notations est égale à $\frac{hc}{2\pi} K_M$, par $\frac{m_{k_0}}{2m_0} m_{k_0} c^2$.

Procédant ainsi, nous partirons de la formule (7 *a*) du Mémoire de Feynman : nous y négligerons les termes cinétiques en P_0, ainsi que les termes en

$$\left(\frac{m_0 c^2}{\lambda}\right)^2 = \left(\frac{m_{k_0}}{m_0}\right)^2$$

qui doivent être très petits. Nous obtiendrons ainsi avec nos notations

$$\begin{aligned} \Delta m_\gamma &= \frac{1}{137\pi} m_0 \left[\frac{3}{2} \log \frac{2K_M}{m_0 c^2} - \frac{1}{4}\right] \\ &= \frac{1}{137\pi} m_0 \left[3 \log \frac{m_{k_0}}{m_0} - \frac{1}{4}\right] \simeq 0{,}044\, m_0. \quad (43) \end{aligned}$$

De même, la formule (9) de Feynman nous donne

$$\Delta m_{k_0} = \Delta m_\gamma - \frac{1}{137\pi}\left[\frac{3}{2}\log\frac{m_{k_0}}{m_0}+\frac{3}{8}\right] m_0 \simeq 0{,}022\, m_0. \quad (44)$$

Dans son Mémoire, M. Feynman, dont la théorie est différente de la nôtre, considère que l'incrément total de masse doit être pris égal à $\Delta m_\gamma - \Delta m_{k_0}$. Il nous paraît logique de considérer que les deux incréments de masse dus à des processus d'émission et de réabsorption indépendants s'ajoutent et par suite d'écrire

$$m_0 = m_\varepsilon + \Delta m_\gamma + \Delta m_{k_0}, \quad (45)$$

d'où

$$m_\varepsilon \simeq 0{,}93\, m_0. \quad (46)$$

La formule approchée (41) devrait donc être remplacée par la formule plus exacte

$$0{,}93\, m_0 = \frac{1}{c^2}\frac{e^2}{4} k_0, \quad (47)$$

ce qui conduirait à la valeur plus exacte de m_{k_0}

$$m_{k_0} = 0{,}93.548\, m_0 \simeq 510\, m_0. \quad (48)$$

On pourrait remarquer qu'on a signalé tout récemment l'existence possible de mésons ayant des masses de cet ordre [12]. Mais la théorie qui vient d'être esquissée est encore trop incertaine pour qu'on puisse attacher beaucoup d'importance à une coïncidence de ce genre (4).

(4) Nous avons montré récemment que l'introduction du facteur de convergence (34) paraît faire aussi converger les intégrales qui se présentent dans le problème de la polarisation du vide *C. R. Acad. Sc.* (1950, **230**. 2061).

Manuscrit reçu le 30 mars 1950.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] *Actualités scientifiques*, n° 181, 1934 et n° 411, 1936, Hermann, Paris.
[2] Une nouvelle théorie de la lumière : la Mécanique ondulatoire du photon (2 volumes), Paris, Hermann 1940-1942.
[3] Théorie générale des particules à spin, Gauthier-Villars, Paris, 1943.
[4] La Mécanique ondulatoire du photon et la théorie quantique des champs électromagnétiques, Gauthier-Villars, Paris, 1949.
[5] Stueckelberg E. G. C. — *Nature*, 1939, **144**, 118 et *Helvetica Physica Acta*, 1941, **14**, 51.
[6] Bopp F. — *Ann. der Physik*, 1940, **38**, 345 et 1943, **42**, 575.
[7] Pais A. — *Varhandlingen der Nederlansche Academie*, 1er Sectie, Deel XIX, n° 1, Amsterdam, 1947.
[8] Feynman R. P. — *Phys. Rev.*, 1948, **74**, 939.
[9] *C. R. Acad. Sc.* : *a.* 1949, **229**, 157; *b.* 1949, **229**, 269; *c.* 1949, **229**, 401; *d.* 1949, **229**, 640.
[10] *Portugaliae Mathematica*, 1949, **8**, 37.
[11] Feynman R. P. — *Phys. Rev.*, 1948, **74**, 430.
[12] *Voir* par exemple : Forster Harriet H. — *Bull. Amer. Phys. Soc.*, 1949, **24**, 16.

LE JOURNAL DE PHYSIQUE ET LE RADIUM. TOME 11, AOÛT-SEPTEMBRE 1950, PAGE 489.

RECHERCHES ET TECHNIQUES DANS LE DOMAINE DES HAUTES PRESSIONS (1)

Par L. DEFFET.

Dr Sc., Directeur de l'Institut Belge des Hautes Pressions.

Sommaire. — L'Institut Belge des Hautes Pressions effectue depuis quelques années une série de recherches tant scientifiques que techniques dans le domaine des hautes pressions.

Ces recherches sont réalisées au moyen d'un matériel permettant d'atteindre des pressions de l'ordre de 10 000 atm en phase liquide et de faire des travaux dans diverses directions. Actuellement les recherches en cours portent en ordre principal sur les points suivants : établissement de courbes de fusion et de transformation de substances organiques, étude expérimentale et théorique de la résistance des tuyauteries à très haute pression, détermination des variations du zéro et de l'hystérésis des tubes manométriques en fonction de la qualité des aciers, influence de la vitesse de mise en charge au cours d'essais de traction, influence de la pression sur les substances du sérum en cause dans les réactions immunologiques. Signalons encore les travaux sur les étalons et les balances manométriques, la mise au point de piézomètres à quartz, le tarage des crushers, et des études ayant comme but de mettre à la disposition des chercheurs des méthodes de détermination et d'obtention des hautes pressions.

Introduction. — Au cours de deux conférences précédentes, M. le Professeur Timmermans vous a exposé les résultats des recherches qu'il a commencées dès 1910 dans le domaine des hautes pressions, et de celles que j'ai entamées sous sa direction à l'Université de Bruxelles en 1932. Je ne reviendrai donc pas sur les résultats tant scientifiques que techniques obtenus au cours de ces recherches, si ce n'est pour dire qu'ils furent à la base de la plupart des travaux actuellement poursuivis par l'Institut Belge des Hautes Pressions.

(1) Conférence faite à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris, le 2 juin 1949.

Cet organisme, dont l'existence avait été précédée avant la guerre par celle du « Centre de Recherches aux Hautes Pressions » fut créé en 1945, par le Professeur F. H. van den Dungen, Membre de l'Académie de Belgique, qui en assume la présidence depuis cette époque.

L'Institut Belge des Hautes Pressions a pris comme but de grouper sous une même direction les diverses recherches effectuées en Belgique dans le domaine des hautes pressions, ce tant du point de vue des recherches scientifiques que techniques, et de pousser à la réalisation de nouvelles recherches : il fut aidé dans cette tâche par les subsides d'un autre organisme belge créé vers la même époque, l'Institut pour l'Encouragement de la Recherche scientifique dans l'Industrie et l'Agriculture, connu en Belgique sous le sigle « I. R. S. I. A. », ainsi que par les subsides de l'industrie et par l'aide de certains ministères, et en particulier celui de la Défense Nationale.

L'Institut Belge des Hautes Pressions possède ses laboratoires propres et travaille en collaboration directe avec quelques laboratoires universitaires, et tout particulièrement avec le Laboratoire des Hautes Pressions de la Faculté des Sciences de l'Université Libre de Bruxelles, à qui il confie des recherches.

Il m'a semblé utile de présenter d'abord la façon dont les recherches aux hautes pressions sont actuellement considérées en Belgique, parce que, dans l'exposé qui va suivre, il pourrait vous apparaître que nous touchons à des domaines fort divers. La cause en réside dans le fait même que notre organisme est subdivisé en diverses sections de travail, dont la plupart sont placées sous la direction scientifique d'un professeur d'une de nos universités, et que chacune de ces sections poursuit dès à présent un certain nombre de recherches de base, ces mêmes recherches devant être amplifiées par la suite, le nombre des sections ne devant vraisemblablement plus être augmenté.

Les sections actuelles de l'Institut Belge des Hautes Pressions sont au nombre de neuf, dont une section d'étude des poudres et explosifs, section pour laquelle certaines méthodes d'étude se rattachent à des techniques particulières au domaine des hautes pressions, et une section de documentation. Dans les autres sections s'effectuent des études se rapportant plus particulièrement aux hautes pressions : les plus importantes, sont les sections s'occupant des hautes pressions statiques, des hautes pressions dynamiques, de la manométrie statique et de la manométrie dynamique, de la spectrographie sous hautes pressions, et des réactions chimiques.

Cette introduction ayant permis d'indiquer comment sont envisagées les recherches à l'I. B. H. P., je vais tenter de vous donner un aperçu des problèmes que nous avons été et sommes amenés à résoudre et quelles sont les techniques que nous employons pour ce faire.

A la fin de cet exposé, je donnerai en quelques mots, la façon dont s'organise actuellement la recherche scientifique appliquée en Belgique, de manière à ce que vous puissiez mieux situer la position de notre Institut dans le cadre général des organismes belges de recherche.

Avant de décrire les recherches effectuées à l'I. B. H. P. et les appareils y existant, quelques mots d'introduction sur les méthodes d'obtention et de mesure des très hautes pressions qui y sont utilisées me semblent nécessaires, afin de ne pas devoir revenir sur ces questions au cours de l'exposé.

Je n'entrerai pas pour le moment dans le détail ni de la construction des appareils, ni de certaines techniques spéciales des hautes pressions, mais je vous signalerai simplement :

1° Que nous réalisons l'obtention des hautes pressions en milieu liquide ou en milieu gazeux uniquement par la compression d'un liquide, non congelable sous haute pression, dans une enceinte quelconque et de forme variable suivant les modalités d'emploi.

La compression de ce liquide est obtenue par l'effet d'un piston dans un cylindre, ce piston étant mû, soit mécaniquement, par l'intermédiaire d'une vis sans fin, soit hydrauliquement par l'intermédiaire d'un piston « différentiel », c'est-à-dire d'un piston dont la surface sur laquelle s'exerce la pression primaire, ou basse pression, est n fois plus grande que la surface qui engendre la pression secondaire, ou haute pression.

Le premier système, c'est-à-dire le système de presse à avancement mécanique du piston, n'est utilisable que jusqu'à des pressions de l'ordre de 10 000 kg : cm² au maximum, tandis que la seconde méthode permet l'obtention de pressions beaucoup plus élevées et dont la limite dépend uniquement de la résistance des enveloppes, de celle du piston et de l'étanchéité des joints.

2° Que nous réalisons la mesure des pressions très élevées, ou des pressions rapidement variables, mesures qui, ainsi que vous le savez, soulèvent des problèmes extrêmement complexes, les appareils devant présenter le minimum d'hystérésis, au moyen de manomètres métalliques du type « Bourdon », soigneusement et fréquemment étalonnés à partir de balances manométriques et au moyen de piézomètres à quartz.

La réalisation de ces appareils a été d'une façon générale effectuée en Belgique en collaboration avec notre Institut, ou même directement par nous ; ceci provient des raisons suivantes :

1° les appareils à haute pression ne sont pas fabriqués d'une façon courante et il est donc souvent

nécessaire de créer soi-même son appareillage propre d'après les besoins définis des recherches;

2° pour remédier dans une certaine mesure à cet état de choses, nous avons engagé certains industriels belges à étudier en commun avec nous la construction d'appareils d'obtention et de mesure des hautes pressions.

C'est ainsi que, dès à présent, nous avons étudié et fait réaliser un certain nombre d'appareils et en particulier les appareils suivants :

a. Une pompe à 2 500 kg : cm² qui est d'un type actuellement courant et sert à des mises sous pression d'appareils divers en essai.

b. Une pompe à 5 000 kg : cm² à piston différentiel, le rapport entre la surface des pistons étant de 1 à 10, ce qui multiplie par 10 la pression exercée sur la surface du grand piston (si l'on ne tient pas compte des pertes dues aux frottements).

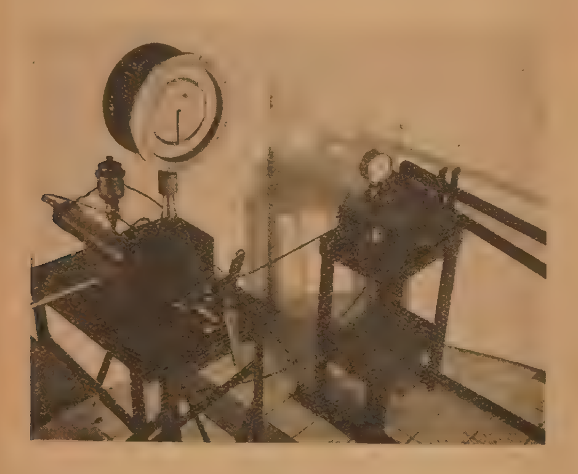


Fig. 1.

Ainsi qu'on peut le voir sur la photographie 1, cette pompe est d'un encombrement fort réduit : cette remarque est d'ailleurs générale pour les appareils à haute et à très haute pression, le volume qu'il est possible de comprimer se réduisant au fur et à mesure que la pression que l'on veut atteindre devient plus élevée.

c. Une pompe à 10 000 kg : cm² basée sur le même principe (le rapport entre la surface des pistons étant ici de 1 à 18); cette pompe est munie d'un manomètre du type Bourdon de grand modèle, gradué jusqu'à 15 000 kg : cm², mais utilisable seulement d'une façon courante jusqu'à 10 000 kg : cm² : on voit sur la photographie 2, de même que sur la photographie précédente de la presse à 5000 kg : cm², le cylindre contenant le piston différentiel et raccordé à la pompe primaire. Cette photographie montre également les diverses connections des appareils vers le cylindre-laboratoire, qui peut être mis à température constante par immersion dans un thermostat.

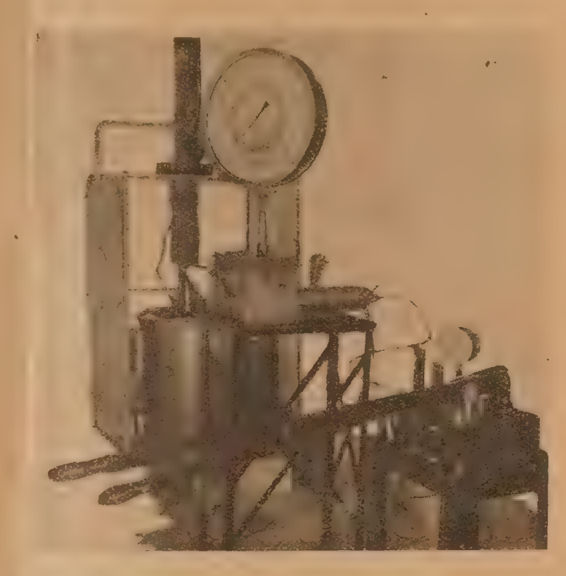


Fig. 2

Ces appareils, ainsi que les manomètres correspondants ont été construits par la Compagnie des Compteurs et Manomètres : cette Société construit actuellement, en collaboration avec notre Institut, une pompe à avancement mécanique du piston qui pourra fonctionner jusqu'à 10 000 kg : cm².

Les pompes à haute pression, à 5 000 et 10 000 kg : cm², en usage dans nos laboratoires, sont d'une réalisation généralement plus compliquée que celles qui sont utilisées par d'autres chercheurs, ceux-ci utilisant des pompes à piston différentiel combinées directement avec le cylindre-laboratoire. Ce système, plus simple à réaliser, ne permet toutefois que d'effectuer des recherches pour lesquelles la température ne doit pas être définie d'une manière très précise, ce qui dans certaines études que nous poursuivons (analyse piézométrique) est d'une importance primordiale.

Je vous signale que les pompes décrites ci-dessus servent à obtenir des pressions en milieu liquide : si l'on veut comprimer un gaz il faut, ou bien utiliser des compresseurs, ce qui est d'un emploi peu commode en laboratoire, ou bien, tout au moins si les volumes envisagés sont faibles, passer par un système permettant de séparer le liquide de compression du gaz à étudier. Nous avons entamé la construction d'appareils de ce type qui consistent en un séparateur entre gaz et liquide par l'intermédiaire

de mercure; ce séparateur est pourvu de contacts électriques, de manière à pouvoir déterminer les hauteurs relatives du gaz, du liquide de compression et du mercure dans l'appareil.

Dans certains cas les recherches nécessitent la mise sous pression brusque des appareils ou de parties d'appareils : ceci se présente, entre autre, dans les études sur la résistance des aciers au choc, que nous avons entamées il y a quelques années. La pression brusque sur les éprouvettes à étudier est obtenue par la combustion d'une poudre plus ou moins vive à l'intérieur d'une solide chambre de compression, la pression agissant sur l'embase d'un piston dans lequel s'engage l'éprouvette à étudier.

En ce qui concerne les appareils de mesure de pression, nous utilisons actuellement principalement des manomètres métalliques du type « Bourdon » de différents modèles, de diverses précisions suivant les besoins : ces manomètres présentent des inconvénients certains sur lesquels nous reviendrons plus loin, mais ils restent malgré tout extrêmement utiles dans la plupart des cas.

Pour la mesure des pressions rapidement variables, nous employons un piézomètre à quartz, de construction classique avec enregistrement photographique par l'intermédiaire d'un tube à rayons cathodiques, et avons à l'étude un manomètre utilisant comme principe la mesure de la variation de grandeurs électriques, en particulier de la résistance.

Tout ceci ne sort donc pas des méthodes habituelles utilisées dans tous les laboratoires à haute pression, et qui emploient les mêmes manomètres « secondaires », appelés ainsi parce que leurs indications doivent être étalonnées à partir d'un manomètre primaire (qu'il ne faut pas confondre avec ce que l'on appelle généralement des manomètres « étalons », et qui, en réalité, ne sont que des manomètres étalonnés à partir d'un manomètre primaire).

Nous possédons un appareil pour l'étalonnage de manomètres tant statiques que dynamiques, appareil qui est constitué par une balance à fléau de grande précision. Cette balance permet d'exercer en un point une force exactement définie : elle est conçue de façon à ce que l'on puisse appliquer ces forces sous différentes vitesses de mise en charge

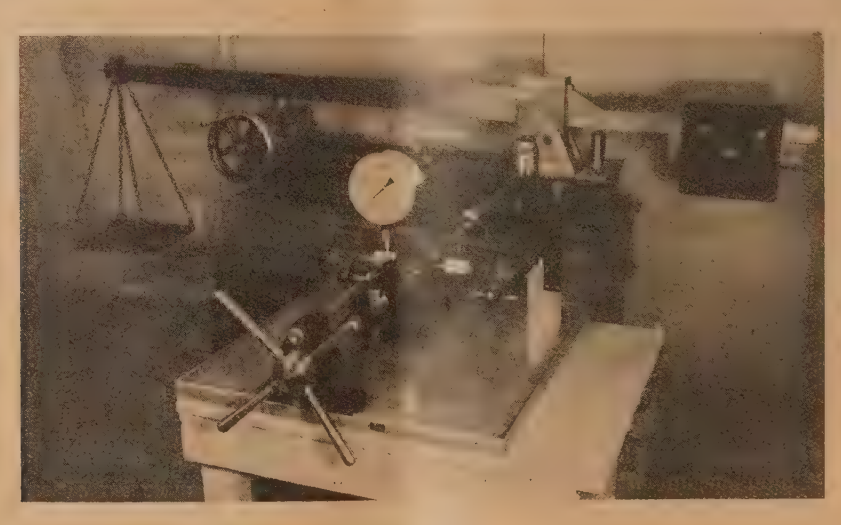


Fig. 3.

parfaitement reproductibles (photographie 3). Cette balance a été combinée de telle sorte qu'on peut l'utiliser pour divers étalonnages :

1° Pour l'étalonnage de manomètres statiques quelconques, la pression étant obtenue au moyen d'un fluide de compression.

Pour cette utilisation, on intercale entre le statif de la balance et le point de réaction, un manomètre à piston libre, c'est-à-dire un manomètre dont le principe consiste à déterminer la force qu'il faut exercer sur un piston pour le maintenir en équilibre sous la poussée hydrostatique à définir.

La balance à piston libre que nous avons réalisée est d'une conception particulièrement simple, mais se rapprochant le plus possible des conditions théoriques à observer dans ce cas.

Cet appareil, peut être mis sous pression avec une pompe quelconque. Sur la photographie 3, on peut voir qu'il est raccordé à une presse à avancement mécanique du piston, dont je vous ai parlé tout à l'heure. Sur cette photographie, on remar-

quera le système de rotation du piston : en effet, afin de réduire au maximum les frottements solides entre le piston libre et son logement, ce premier doit être soumis à une rotation au moment des mesures.

2° Pour l'étalonnage du quartz piézoélectrique on intercale entre le statif et le point de réaction de la balance, un support simple, le bouchon porte-quartz étant introduit par le dessous.

3° Enfin, pour l'étalonnage des crushers, on utilise un support spécial, permettant la rotation du cylindre entourant le piston afin de réduire les frottements sur ce dernier au moment de la mesure.

En plus de cette balance manométrique, nous utilisons pour des études spéciales (par exemple l'étude de l'hystérésis des manomètres « Bourdon ») un manomètre à piston libre de forme simple et classique, consistant en un cylindre dans lequel peut coulisser un piston de diamètre parfaitement connu, la poussée hydrostatique à mesurer étant contrebalancée par des poids suspendus à une rotule s'adaptant à l'extrémité libre du piston.

Ce préambule ayant servi à définir la nature des appareils que nous utilisons, je passerai maintenant à l'exposé des études et travaux réalisés à l'I.B.H.P. en indiquant dans chacun des cas les moyens spéciaux mis en œuvre.

Exposé des recherches.

1. Section des hautes pressions statiques. — Dans le domaine des hautes pressions statiques deux types de travaux ont retenu notre attention, les premiers relatifs à l'étude des variations de certaines grandeurs physiques, en particulier la température de fusion et la température de transformation de formes polymorphes, de substances pures et de solutions concentrées de substances pures, recherches dont les résultats pourront être intégrés dans les théories modernes des états liquide et solide et des phénomènes de transition « ordre-désordre »; les seconds se rapportant à des problèmes plus précis sur l'état des matériaux soumis à de très hautes pressions.

Dans les premiers de ces travaux se place la continuation des études que j'avais poursuivies jusqu'en 1940 sur l'analyse piézométrique, et en particulier la détermination avec grande précision de l'influence de l'élévation de pression sur les températures de fusion et de transformation de corps purs et de mélanges binaires organiques ou inorganiques (solutions concentrées).

Ces travaux, dont l'importance au point de vue théorique et les résultats vous ont été signalés par M. Timmermans, ont entre autres, comme buts de définir une échelle manométrique, comparable à l'échelle thermométrique, et d'étudier les propriétés thermodynamiques sous pressions élevées de substances organiques et de leurs mélanges binaires.

Ces recherches sont réalisées au moyen de l'analyse piézométrique, qui consiste à étudier la courbe de variation de la température de fusion ou de transformation sous l'influence d'une chute régulière de pression, à température constante. Les résultats, ainsi que j'ai pu le montrer au cours des travaux publiés dès 1936, sont remarquables et la méthode est d'une grande rigueur.

La réalisation technique de cette méthode est assez compliquée, surtout si l'on veut pousser les recherches jusqu'à des pressions de l'ordre de 10 000 atm, comme nous le faisons actuellement.

En effet, il est nécessaire :

1° d'avoir une bombe-laboratoire séparée du corps de presse, afin de pouvoir la maintenir à une température parfaitement constante;

2° de posséder un système permettant d'effectuer une chute de pression régulière et très lente dans la bombe-laboratoire, les variations de volume devant être très faibles, afin qu'à tout moment la substance étudiée se trouve en équilibre.

En ce qui concerne ce deuxième point, la méthode la plus rigoureuse est celle qui consiste à utiliser une pompe à entraînement mécanique du piston et à actionner celui-ci au moyen d'une horloge à poids ou d'un moteur démultiplié. Précédemment nous avons utilisé chacun des deux systèmes, de manière à réaliser des chutes de pression régulières de l'ordre de 5 à 10 atm à l'heure

Je n'entrerai pas dans les détails de ces appareils, qui doivent être en outre combinés à un système de photographie automatique du manomètre.

Actuellement, l'un des assistants de l'Institut, M. Trappeniers, a réalisé un appareil de chute de pression basé sur le principe d'une fuite réglable, appareil dont la description mérite d'être faite (photographie 4).

La haute pression est obtenue à l'aide d'un amplificateur à piston différentiel d'un rapport 1 à 18, rendu parfaitement étanche par des joints glissants automatiques. Un système de fuite fait tomber lentement la basse pression de l'amplificateur, causant ainsi un recul du piston différentiel et une augmentation lente du volume dans la partie soumise à haute pression. L'espace dans le cylindre amplificateur, compris entre la grande et la petite section du piston, suit fidèlement cette variation de volume tout en la multipliant par le rapport des sections du piston moins la petite section : soit environ 1 à 17. Cet espace est mis en communication par l'intermédiaire d'huile et de mercure à une cellule de mesure formée par un tube de verre de 3 mm de diamètre; à la partie inférieure de cette cellule se trouve un contact fixe en platine et à sa partie supérieure un contact mobile.

Deux robinets, pouvant être actionnés par un

dispositif électromagnétique, permettent de mettre la cellule de mesure en communication soit avec un réservoir à mercure, soit avec l'espace entre les deux pistons, dont on veut mesurer la variation de volume.

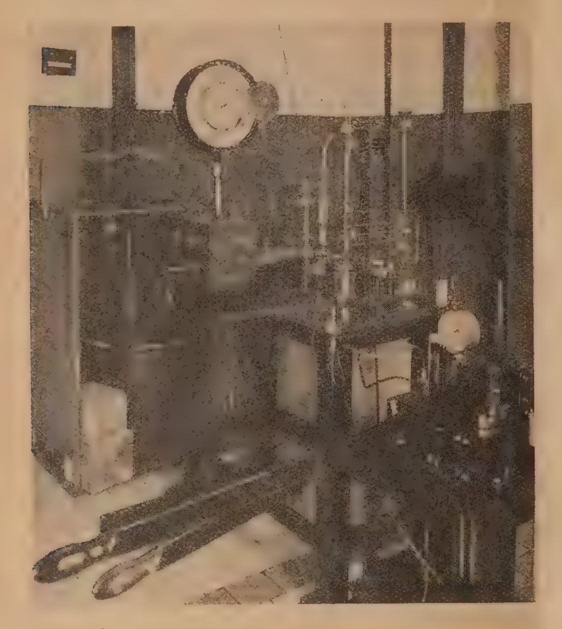


Fig. 4.

Au début de l'expérience le robinet isolant la cellule est fermé, l'autre robinet donnant accès à la réserve de mercure étant ouvert. La cellule se remplit lentement jusqu'à ce que le mercure ferme le contact supérieur, faisant ainsi simultanément s'ouvrir le premier robinet et se fermer l'autre. Le mercure de la cellule s'écoule, aspiré par l'augmentation de l'espace entre les deux pistons. Lorsque le contact inférieur est interrompu, le même dispositif électrique ferme de nouveau le premier robinet et ouvre le second, de sorte que la cellule puisse se remplir de nouveau. En même temps l'impulsion électrique actionne l'obturateur d'un appareil photographique, enregistrant ainsi une photo du manomètre sur un film mobile.

De cette façon on prend une série de photographies du manomètre à un intervalle de volume exactement donné par le volume délimité par les deux contacts électriques.

La pesée du mercure qui remplit la cellule permet de calibrer très exactement son volume. En fait la précision n'est limitée que par la reproductibilité des contacts électriques; elle peut atteindre 1 mm^3, soit pour 1 cm^3, le 1/1.000^e. Tenant compte de l'amplification de 1 à 17 dans l'espace entre les pistons et également des écarts sur le diamètre du cylindre on pourrait obtenir le 1/500e, à condition alors de réaliser une constance de température à 0°,1.

Ainsi que je vous l'ai signalé tantôt, dans cette section se poursuivent également des recherches sur la résistance des aciers à haute pression et en particulier l'étude des diverses caractéristiques des tubes soumis à des pressions élevées : cette étude, dont les résultats doivent servir à définir des théories sur le comportement des tubes à haute pression, a été réalisée de manière à pouvoir déterminer la limite élastique du métal et de suivre le comportement du tube jusqu'à la rupture.

a. **Etude sur l'éclatement des tubes.** — Le but de cette étude expérimentale aussi bien que théorique est de fournir une base sûre pour le calcul des appareils travaillant à très haute pression et pour l'étude des tubes à parois multiples. On sait en effet que la théorie de la résistance des matériaux sous sa forme habituelle, devient insuffisante lorsqu'elle est appliquée à des cylindres épais devant résister à une pression interne élevée. Bridgman par exemple a montré que de tels cylindres peuvent supporter des pressions excédant de 4 à 5 fois celles prévues par la théorie ordinaire. Cet effet est dû, semble-t-il, à des propriétés spéciales de l'état plastique que prennent les couches internes du tube, propriétés très mal connues encore jusqu'ici. Il en résulte que les méthodes de calcul pour appareils à hautes pressions, extrapolées des théories ordinaires, contiennent toujours une sérieuse part d'empirisme.

En général ces méthodes partent d'une analyse mathématique des états de tension dans la paroi du tube qui conduit à une relation entre la pression interne et les tensions radiales et tangentielles dans la paroi. On est obligé alors d'introduire dans le raisonnement un critère simple de limite d'élasticité ou de rupture afin de pouvoir calculer les états critiques pour le tube global. Seule une étude expérimentale de l'éclatement de tubes peut conduire à la connaissance parfaite d'un tel critère.

La technique des essais d'éclatement à haute pression est difficile et, à notre connaissance, les travaux de Cook et Robertson ne dépassant pas quelques 2 000 atm sont les seuls de ce genre jusqu'à présent. A la lumière de ces faits, on voit l'intérêt que revêt une étude systématique des conditions de gonflement et de rupture de tubes épais jusqu'à des pressions de 5 000 atm comme nous l'avons entreprise, d'autant plus que, par comparaison des résultats d'éclatement de tubes avec des essais mécaniques simples sur des éprouvettes tirées de ces mêmes tubes, nous espérons rattacher le critère d'élasticité et de rupture aux caractéristiques des matériaux données par les essais mécaniques habituels.

Ainsi, nous avons l'espoir de pouvoir apporter

une contribution sérieuse à la théorie des enveloppes épaisses qui permettra de calculer avec certitude les tubes devant résister à très haute pression et d'entamer ensuite sur cette base certaine une étude de frettage de tubes.

Appareillage de recherche. — Le tube à essayer est soumis à une pression intérieure croissante obtenue par compression d'huile au moyen d'une pompe primaire à 800 kg : cm² et d'un cylindre à piston différentiel. L'augmentation de volume résultant du gonflement se mesure en introduisant le tube en essai dans un second tube de diamètre double, le tout formant un système étanche.

Le remplissage du tube extérieur se fait par une ouverture ménagée dans le tube extérieur et l'étanchéité est réalisée grâce aux deux rondelles en caoutchouc; un joint mobile permet la fermeture du tube extérieur à une extrémité. L'espace annulaire rempli d'huile est en connexion avec un appareil de mesure de volume suffisamment précis ($\pm$ 0,05 cm³). Cette mesure s'effectue par la lecture du niveau d'huile dans une burette graduée jusqu'à 100 cm³. Le remplissage de cet appareil est réalisé par les deux arrivées d'huile. Les robinets permettent le réglage du niveau d'huile dans la burette (photographie 5).

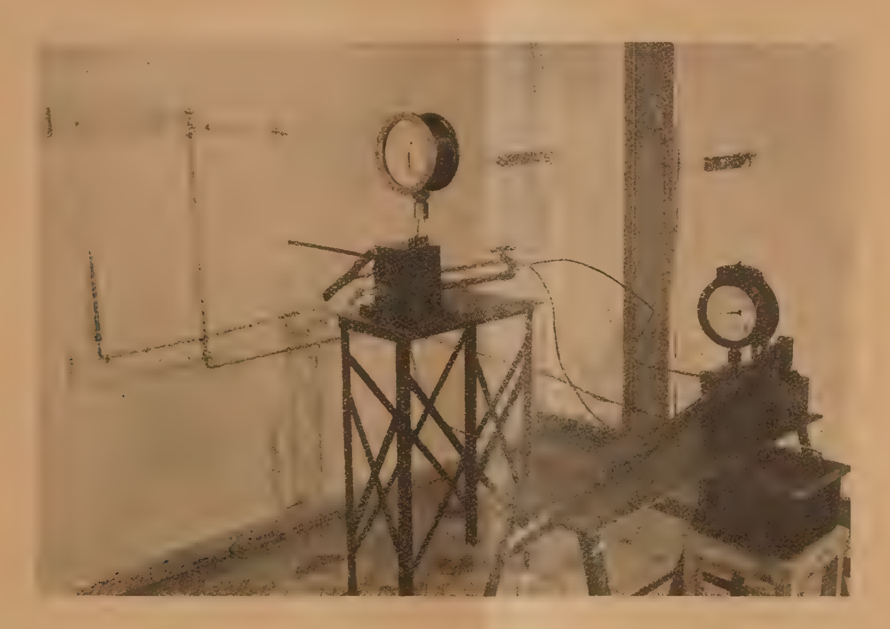


Fig. 5.

Le volume de l'huile augmente de 0,4 cm³ pour une élévation de température de 1 degré. Il est donc nécessaire de thermostatiser la salle aussi bien que possible et d'effectuer les corrections nécessaires aux lectures du volume. Cette variation a une grande importance relative dans la région du domaine élastique, l'erreur pouvant dans ce cas atteindre 1/200ᵉ.

Nous n'avons pas tenu compte des effets dus à l'échauffement de l'huile lors de la compression, ceux-ci étant négligables, vis-à-vis des autres causes d'erreurs.

A chaque instant on peut suivre l'augmentation du gonflement en fonction de l'élévation de pression et ce jusqu'à l'éclatement. Si chaque lecture s'effectue à l'équilibre parfait, on pourra tracer un diagramme ayant une signification physique simple. La lecture des pressions s'effectue au manomètre Bourdon.

Nous n'avons, jusqu'à présent tiré aucune conclusion des observations faites sur le gonflement qui obéit à une loi complexe due aux effets superposés de la pression interne, et des tensions radiales et tangentielles du tube. On a simplement observé que le tube gonfle d'abord uniformément sur toute sa longueur, puis éclate à l'endroit de moindre résistance.

Par contre, les graphiques obtenus en portant en ordonnée la pression agissant à l'intérieur du tube et en abscisse la valeur du gonflement, montrent que la courbe obtenue de cette façon correspond exactement à la courbe des $\frac{\text{efforts}}{\text{allongements}}$ obtenus à partir de l'étude d'un acier en traction simple.

Nos études ne sont pas suffisamment avancées pour que nous puissons en tirer dès à présent des conclusions quelconques, mais il est certain que

ce premier résultat nous incite à espérer beaucoup de la suite de ces travaux, ainsi que nous l'ont montré les premières études théoriques de la question, études faites en relation avec nos résultats expérimentaux par M. Goldschmidt et par M. Sariban, tous deux assistants à l'Université Libre de Bruxelles.

b. **Hystérésis des tubes manométriques.** — L'étude de l'hystérésis que présentent les tubes pour manomètres mécaniques du type Bourdon est également poursuivie dans cette section : cette étude, qui en est à ses débuts, a déjà permis de définir quelles qualités d'acier conviennent le mieux pour ces manomètres d'usage courant.

A. On sait que les membranes et tubes manométriques utilisés comme système de détection de la pression présentent des phénomènes d'hystérésis extrêmement marqués qu'il est difficile d'éliminer même si le manomètre a subi de nombreuses mises sous pression en vue de le vieillir. Ce phénomène peut être défini comme suit : si l'on observe les indications d'un manomètre nouvellement fabriqué par rapport à celles données par une balance manométrique, on s'aperçoit que lors de la montée de la pression, les indications du manomètre sont entachées d'une erreur par défaut, présentant un maximum vers le milieu de l'échelle et que lors de la descente, ces indications présentent une erreur par excès (hystérésis totale). Si l'on vieillit le tube manométrique par un traitement thermique ou par mises sous pressions successives en augmentant la pression jusqu'à une valeur maximum supérieure d'environ 50 pour 100 à la valeur maximum normale d'utilisation, on s'aperçoit que ces erreurs diminuent sans toutefois s'annuler complètement.

B. A cette première cause d'erreur s'en ajoute une seconde qui échappe souvent aux utilisateurs, du fait de la construction même des manomètres : celle-ci est due à ce que l'aiguille du manomètre revient après un temps plus ou moins long de repos à une position inférieure à sa position de zéro; cette variation se produit même avec des manomètres parfaitement vieillis. Elle est difficile à déceler, l'aiguille étant généralement arrêtée à la position du zéro (hystérésis négative du zéro).

C. En troisième lieu, la valeur du zéro varie avec le temps et le nombre des mises sous pression : cette variation se fait dans le sens positif c'est-à-dire que l'aiguille du manomètre ne revient pas à zéro, alors que la pression est redescendue à la pression atmosphérique (hystérésis du zéro). Cette variation du zéro se produit principalement lorsque le manomètre n'a pas été suffisamment vieilli ou quand, par suite d'une erreur de manœuvre, le manomètre a été soumis à une pression trop élevée : il semble donc plus facile de s'y soustraire.

Programme des recherches. — Les méthodes utilisées actuellement tant au cours du vieillissement des manomètres que de remises à zéro, sont des méthodes purement empiriques, uniquement basées sur des données qualitatives, observées pour chaque type de tube ou de membrane manométrique.

Il convenait d'étudier systématiquement le problème, aussi le programme suivant a-t-il été adopté :

Un premier travail de dépouillement du problème sur les types habituels de membranes et de tubes manométriques a été entamé. Ce travail consiste à définir exactement les différents phénomènes d'hystérésis en fonction du nombre des mises sous pression, du temps de mise en charge, du temps de mise sous pression, du temps de repos. Les pressions réelles sont données par une balance manométrique et éventuellement par des manomètres étalons fréquemment vérifiés.

Devant la complexité du problème nous avons divisé le travail en deux parties :

1° étude de la variation du zéro;

2° étude de l'hystérésis elle-même.

Au cours de la première partie des recherches, nous nous sommes limités à étudier la stabilité du zéro (détermination de la variation globale du zéro) de différents tubes en fonction des variables suivantes :

1° la composition de l'acier du tube manométrique;

2° son recuit;

3° le nombre de mises sous pression, c'est-à-dire le vieillissement du tube;

4° la valeur de la pression maximum atteinte;

5° le temps de repos après une mise en charge (15 mn);

6° la durée de mise sous pression (5 mn).

Nos premiers essais ont porté sur des tubes en acier de trois types différents de la Compagnie des Compteurs et Manomètres de Liége, les revenus étant pour chacun d'eux de 250, 350 et 450° :

1° acier inoxydable;

2° acier au Cr-Ni-Mo;

3° acier à ressort Si-Mn.

Afin de simplifier la question, nous avons fixé à 5 mn la durée de mise sous pression, et nous avons constaté qu'après 15 mn de repos à la pression atmosphérique, le zéro était complètement stabilisé. Pour un tube en acier dont la composition et le recuit sont définis, les variables se réduisent donc à deux, dont la détermination est d'ailleurs liée : d'une part, le nombre de mises sous pression, d'autre part, la valeur de la pression maximum atteinte.

Les mesures furent effectuées par tranches de 100 kg : cm² jusqu'au point de rupture et leur

nombre a été tel que pour chaque pression on obtienne une stabilisation du zéro. Au voisinage de la limite élastique nous avons fait des mesures par tranches de 50 kg : cm².

Les élongations réelles du tube, amplifiées et transmises par un miroir tournant, sont mesurées par voie optique, ces élongations se traduisent finalement par le déplacement d'un spot lumineux sur une échelle graduée. Le rapport entre ces deux grandeurs étant préalablement défini, il est possible d'étalonner l'échelle à 1 kg : cm² près, quoique le rapport ne soit pas linéaire sur toute l'étendue de l'échelle.

La pression est obtenue au moyen d'une pompe primaire à avancement mécanique du piston : cette pression peut être mesurée à chaque instant sur un manomètre auxiliaire.

La température de la salle fut maintenue constamment aux environs de 20°, celle-ci influençant légèrement la position du spot.

Cette méthode n'est pas extrêmement rigoureuse; elle nous a toutefois permis de mettre en évidence la limite élastique des différents tubes.

En outre, les résultats suivants ont déjà pu être acquis :

a. Toutes les courbes obtenues en portant en abscisse les presssions et en ordonnée les mesures de la variation totale du zéro, ont mis en évidence, dans leur première partie, un déplacement important du zéro. Ceci peut être attribué au fait que le tube subit un réarrangement d'ordre purement mécanique, lors de sa première mise sous pression.

b. La longueur de chacun des paliers délimite le domaine de stabilité du manomètre, c'est-à-dire son domaine élastique. Dès que le point d'inflexion a été dépassé, on atteint le domaine plastique où les déformations restent permanentes.

2. Section des hautes pressions dynamiques. — Dans cette section nous avons à l'étude l'influence de la vitesse de mise en charge sur les qualités de l'acier et des métaux non ferreux. Cette recherche, consiste à étudier les allongements de la limite élastique, la charge de la rupture d'éprouvettes soumises à des tractions brusques.





Fig. 6.

Ces tractions sont obtenues par la mise en combustion de poudres plus ou moins vives à l'intérieur d'une bombe-laboratoire. Les gaz de la combustion agissent sur l'embase d'un piston se trouvant à l'intérieur de la bombe : ce piston est solidaire de l'éprouvette à étudier. Celle-ci est attachée à l'extérieur de la bombe dans un flasque lui-même fixé par quatre tenons à un des côtés de la bombe (photographie 6).

La pression instantanée (vitesse de mise en charge de l'ordre de 1/1000e de seconde) est enregistrée au moyen d'un piézomètre à quartz et l'allongement concomitant de l'éprouvette est enregistré au moyen d'un appareil à cellule photoélectrique.

Les résultats de cette enquête ont été jusqu'à présent assez confus quoique correspondant à ceux qui ont été obtenus dans quelques laboratoires étrangers, et en particulier en Angleterre et aux

États-Unis. En résumé, on peut dire que l'on n'a pas observé de grandes différences dans le comportement des aciers soumis à une traction lente ou à une traction par choc. Au point de vue de la mécanique interne, il n'a pas été possible d'étudier les différences de comportement du métal soumis à de tels efforts : aussi avons-nous décidé de reprendre l'étude de ce problème sur des éprouvettes en cuivre électrolytique.

En outre, nos travaux nous ont montré que si nous voulions que des résultats puissent être tirés de notre méthode d'étude des aciers par traction dynamique, nous devions nous attacher à rendre la méthode encore plus précise, de façon à être certains de ne pas attribuer à des phénomènes secondaires, des résultats d'observations difficilement explicables à première vue. Il s'agit en tout premier lieu des vibrations observées au cours de l'enregistrement de l'allongement, vibrations dont nous ne sommes pas encore parvenus à déterminer la cause et la nature réelles. De même nos observations doivent être faites avec plus de précision en ce qui concerne la détermination du module d'élasticité, afin d'en observer une variation éventuelle avec la vitesse de mise en charge.

A ces conditions, nous croyons pouvoir dire que cette méthode sera à même de donner des renseignements nouveaux sur le comportement de la matière soumise à un choc ou une traction brusque, et par là même contribuer à la connaissance des matériaux soumis aux hautes pressions.

3. **Section de recherches spectroscopiques à haute pression.** — Il est inutile de vous rappeler que l'une des questions qui dominent la physicochimie est celle de la connaissance des champs de force développés par les molécules. En effet, ces champs de force conditionnent un grand nombre de phénomènes physicochimiques, parmi lequels on peut citer la cohésion des liquides et des solides, les écarts des comportements réels des gaz par rapport à ceux des gaz parfaits, ainsi que de solutions réelles par rapport aux solutions idéales, la solubilité réciproque des substances, les phénomènes d'absorption, et enfin les réactions chimiques en général.

Or, les moyens d'investigation plus ou moins directs de ces champs étant rares, il est apparu au Professeur d'Or de l'Université de Liège que les méthodes spectroscopiques et tout spécialement l'étude des spectres de vibration comptent parmi celles dont on peut espérer le plus : en effet, les vibrations intramoléculaires en général peuvent être influencées par les champs créés par les molécules voisines; et les vibrations intramoléculaires se manifestant dans les solides et les liquides, dépendent directement de ces champs. Ces différentes vibrations sont ainsi susceptibles d'être modifiées par un rapprochement entre les molécules et par conséquent, sous l'effet d'une vibration de la pression à laquelle la substance ou le mélange de substances considéré est soumis.

Nous avons envisagé tout d'abord l'étude de l'effet de pressions de quelques centaines, puis de quelques milliers d'atmosphères sur les spectres d'absorption infrarouges de diverses substances et plus spécialement d'hydrocarbures et de dérivés d'hydrocarbures; après avoir mis au point un montage permettant de travailler à la température ordinaire, nous voudrions tenter de l'adapter aux basses températures où les spectres sont généralement plus simples et d'une analyse plus aisée. Nous projetons d'étendre ces études aux spectres de diffusion; la chose présentera évidemment de plus grosses difficultés techniques, notamment à cause de la nécessité de se servir des fenêtres de dimensions plus grandes que pour l'absorption. Nous pensons également que de telles études poursuivies systématiquement sont capables d'apporter des données d'une portée plus grande que celles auxquelles on parviendrait en étudiant l'influence des hautes pressions sur quelques systèmes chimiques au double point de vue vitesse de réaction et équilibre chimique.

Etat d'avancement des travaux. — Les travaux de cette section n'ont pas encore été réellement entamés, la mise au point des appareils à haute pression étant encore en cours actuellement : ces appareils se composent :

1° d'une pompe à 2 500 kg : cm² à avancement mécanique du piston, identique à celle décrite tout à l'heure;

2° d'un appareil de mesure avec fenêtres en quartz;

3° d'un appareil pour la séparation, sous pression, du liquide de compression primaire (huile), du liquide de compression secondaire (mercure) et du liquide ou du gaz à étudier. Cet appareil, d'une conception nouvelle, est en construction et est réalisé par un de nos techniciens.

4. **Section de bactériologie.** — Les effets biologiques des hautes pressions ont déjà fait l'objet, à l'étranger, de plusieurs travaux, notamment en France de Machebœuf. Ces travaux ont consisté, en particulier, à déterminer la résistance aux hautes pressions, d'une part de diverses formes de la vie dans le monde des infiniment petits (bactéries, spores, virus, bactériophages), et d'autre part des substances du sérum en cause dans les réactions immunologiques (anticorps divers, isoagglutinies des groupes sanguins). Il a paru au Professeur Bordet, Directeur de l'Institut Pasteur du Brabant, à ce dernier point de vue notamment, qu'il était indiqué d'entreprendre de nouvelles recherches.

Jusqu'à présent elles ont permis au Dr Bordet de déterminer la résistance de certaines réagines, dont la nature demeure assez mystérieuse et qu'il était intéressant de comparer, à cet égard, aux anticorps classiques. Au cours de ces recherches, le Dr Bordet a constaté l'apparition dans le sérum soumis aux hautes pressions (5 000 kg : cm²) d'un pouvoir anticomplémentaire très intense, dont l'étude est poursuivie.

Je ne m'étendrai pas sur cette partie des recherches, qui d'ailleurs échappent à mes compétences : je signalerai toutefois que ces études ont été effectuées jusqu'à présent au moyen de l'appareillage que je vous ai décrit tout à l'heure et qui sert en ordre principal aux études poursuivies sur l'analyse piézométrique.

Un certain nombre de résultats intéressants ayant été acquis par le Professeur Bordet, nous avons fait mettre en construction un appareil d'un emploi plus commode, similaire à celui utilisé par exemple par Newitt à l'Imperial College (Londres), et permettant d'atteindre des pressions de l'ordre de 15 000 atm. Cet appareil est composé d'un corps de pompe à piston différentiel, surmonté d'un bloc-laboratoire, la pression étant mesurée, soit sur le manomètre adapté à la pompe primaire et dont les indications sont alors à multiplier par le rapport entre les surfaces du piston différentiel, soit sur un manomètre adapté directement sur le bloc-laboratoire. La séparation du milieu de compression (huile) et de la substance à étudier se fait par l'intermédiaire de mercure (de même que dans le cas de l'analyse piézométrique) à l'intérieur même de la bombe-laboratoire dans un petit appareil en acier inoxydable.

5. **Section de manométrie statique.** — Le but poursuivi par cette section est de mettre à la disposition des laboratoires scientifiques et industriels des étalons manométriques. Ces étalons seront constitués par des substances chimiquement pures dont nous aurons préalablement déterminé avec précision la valeur de la pression de fusion (ou de transformation dans le cas de substances polymorphes) par rapport à la température. Il faut que ces substances répondent à certaines conditions et entre autres qu'elles soient liquides ou solides à la température et pression atmosphériques, que la variation de volume à la fusion ou à la transformation soit assez conséquente pour pouvoir être aisément décelable et enfin que les pressions de fusion ou de transformation (même pour des pressions de l'ordre de 10 000 kg : cm²) soient réparties dans une échelle de températures aisément abordables.

Le premier pas à franchir pour la détermination de telles pressions « étalons » est de posséder une méthode qui permette la détermination exacte des pressions, ce qui ne peut se faire que par des balances manométriques. Avant tout il convenait d'effectuer l'étude théorique des balances : avec la collaboration de M. Trappeniers, j'ai rédigé un Mémoire sur cette question, dont nous transmettrons sous peu un exemplaire à tous les spécialistes de la question afin que ceux-ci puissent nous donner avant la publication de ce travail, leur avis sur notre façon de voir. D'après les enseignements apportés par cette étude nous avons fait construire une première balance manométrique à piston libre, que j'ai décrite tout à l'heure.

6. **Section de manométrie dynamique.** — Dans cette section nous avons groupé les appareils et méthodes de mesure servant à effectuer des mesures dans le domaine des hautes pressions dynamiques.

1° Je vous ai signalé tout à l'heure que nous possédions un piézomètre à quartz et que nous avions en construction un appareil du même type, mais muni de nombreux perfectionnements. Il est inutile de traiter de cette question en détail : elle est suffisamment connue et comme vous possédez en France des spécialistes hautement qualifiés, ceux-ci pourront vous donner dans ce domaine des renseignements des plus précis. Ces appareils ne nous servent d'ailleurs que pour mesurer des pressions rapidement variables et non à effectuer des travaux sur la question même de manométrie dynamique, quelques problèmes ayant simplement dû être résolus au cours de la mise sur pied du nouveau prototype.

2° Il existe d'autres méthodes pour la mesure des pressions rapidement variables, et en particulier la méthode universellement connue des crushers, petits cylindres en cuivre parfaitement usinés dont l'écrasement permet de définir la force ou la pression qui a provoqué cet écrasement. Afin de pouvoir faire cette détermination, il convient d'étalonner préalablement ces crushers : je ne m'étendrai pas sur cette question de l'étalonnage des crushers, qui a fait, principalement en France, l'objet de nombreuses et très belles recherches. La question du rapport entre les valeurs de l'étalonnage statique et dynamique ne semble pas être entièrement résolue : toutefois nous n'avons pas repris cette question, celle-ci sortant trop du champ, d'ailleurs forcément restreint de nos préoccupations.

Nous avons été, par le concours de certaines circonstances, amenés à effectuer des étalonnages statiques d'un certain nombre de crushers d'infanterie, c'est-à-dire de 4,9 mm de hauteur et de 3 mm de diamètre. Ces étalonnages ont été effectués au moyen de la balance manométrique dont j'ai fait tantôt une description succinte, et avaient la raison d'être suivante. En 1945, l'Arsenal belge d'Armement, s'est trouvé devant le problème de l'étalonnage

des crushers, et ne possédant plus de balances d'étalonnage primaires, telle que la classique balance à piston libre d'Amagat, a étalonné ces crushers au moyen de méthodes secondaires de comparaison, telles que l'utilisation de machines de compression quelconques.

La balance manométrique de notre Institut est en réalité une balance primaire et déjà peu avant la guerre nous avions été amenés à effectuer des comparaisons entre les diverses méthodes d'étalonnage; nous avons en 1946, repris cette question, et étalonné des crushers fabriqués à diverses époques et par différents arsenaux et fabricants.

Nous avons pu ainsi comparer les courbes d'étalonnage obtenues au moyen de balances et celles obtenues avant la guerre au moyen de balances manométriques à piston libre, sur des crushers fabriqués par l'Arsenal d'Armement belge, par la Fabrique Nationale d'Armes de Guerre, et par le Laboratoire Central de l'Artillerie Navale, qui a bien voulu mettre à notre disposition un certain nombre de crushers.

Les conclusions auxquelles nous arrivons, sont que, moyennant certaines précautions au sujet desquelles je ne m'étendrai pas ici, cette partie du sujet débordant d'ailleurs quelque peu du cadre même de ma causerie, moyennant certaines précautions, nous arrivons à déterminer des courbes d'étalonnage strictement semblables à celles obtenues au moyen de manomètres à piston libre. Ce résultat qui est d'ailleurs logique, puisque dans chacun des cas, on utilise pour effectuer l'étalonnage en question un manomètre « primaire », nous a permis de donner certains renseignements aux arsenaux belges quant à la valeur de leur méthodes actuelles d'étalonnage. Ceci a encore l'autre avantage de montrer, que notre balance pourrait parfaitement se substituer à des méthodes plus complexes dans ce cas spécial de l'étalonnage des crushers.

Je pense avoir passé de la sorte en revue les quelques questions qui retiennent actuellement notre attention, ainsi que les méthodes et moyens techniques que nous avons mis en œuvre pour les résoudre.

Je m'en voudrais toutefois de ne pas vous signaler que nous avons actuellement à l'étude la mise sur pied d'une section qui pourrait dans la suite prendre une extension assez grande : il s'agit de la section d'étude des réactions chimiques, dont les travaux entrepris par le Professeur d'Or sont en quelque sorte le point de départ. Il ne m'est guère possible de vous donner à ce sujet plus de précisions, ces programmes de travail étant seulement en discussion actuellement.

Avant de terminer, je vous dirai quelques mots sur la manière dont s'organisent et se subsidient actuellement en Belgique les recherches scientifiques, et principalement celles qui ont comme but direct ou indirect une application industrielle et qui s'effectuent de ce fait en rapport étroit avec les représentants de certaines branches industrielles.

L'organisme belge auquel nous devons de pouvoir effectuer de semblables travaux est l'I.R.S.I.A. ou Institut pour l'Encouragement de la Recherche scientifique dans l'Industrie et l'Agriculture que je vous ai déjà cité tout à l'heure : c'est cet organisme qui non seulement subventionne ces travaux, mais qui, tout au moins dans certains cas, les suscite.

L'I.R.S.I.A. subsidie les travaux qui sont présentés à l'approbation de son Conseil, à condition que le budget de recherche soit couvert à raison de 50 pour 100 par des participations industrielles. En ce qui concerne le budget d'acquisition du premier appareillage de recherche, l'I.R.S.I.A. supporte généralement sinon la totalité de la dépense, du moins une partie très importante de celle-ci.

Enfin d'une manière générale, cet organisme subsidie ces recherches pour une période de deux ans, après laquelle des renouvellements de subsides peuvent être demandés dans les mêmes conditions.

Il est inutile de vous souligner combien une telle politique est à la fois généreuse et habile, puisqu'elle incite l'industrie à subventionner d'importantes études, celles-ci étant largement subsidiées par l'Etat par l'intermédiaire de l'I.R.S.I.A.

Je m'en voudrais également de ne pas vous signaler l'existence d'un arrêté-loi datant du début de 1947, et dû à l'initiative du Ministère de la Coordination économique et du Rééquipement national, arrêté-loi permettant à des groupements industriels de créer des « Centres de recherches scientifiques et techniques », ces centres étant soutenus lors de leur agréation par un subside unique de l'État : ces organismes sont en quelque sorte les intermédiaires entre les industriels qu'ils représentent, l'I.R.S.I.A. et les laboratoires de recherches.

D'après l'examen des résultats acquis dans divers domaines de la recherche appliquée en Belgique, on peut assurer que l'œuvre qu'a entreprise l'I.R.S.I.A. est pleine de promesses et que la création récente de quelques centres donnera une impulsion nouvelle à ces mêmes recherches, en permettant de subsidier de plus nombreux laboratoires, et surtout de les subsidier d'une manière plus importante et plus continue.

Manuscrit reçu le 20 mars 1950.

PROCÉDÉ DE COMPTAGE DIFFÉRENTIEL DANS LES SÉLECTEURS D'AMPLITUDES D'IMPULSIONS

Par G. VALLADAS avec la collaboration technique de J. THÉNARD.
Commissariat à l'Énergie atomique. Laboratoires du Fort de Châtillon.

Sommaire. — On nomme sélecteurs d'amplitudes d'impulsions les appareils, principalement utilisés en Physique nucléaire, qui ont pour fonction le triage automatique, suivant leurs amplitudes, des impulsions qui leur sont appliquées. Le plus simple de ces appareils est le sélecteur à un canal. Interposé entre un détecteur de particule et un dispositif de comptage, il ne laisse passer que les impulsions dont l'amplitude est comprise entre deux valeurs déterminées.

On passe en revue dans cet article quelques procédés utilisés pour parvenir à ce résultat et l'on décrit un appareil fondé sur un principe nouveau dont le fonctionnement est indépendant des caractéristiques des impulsions qui lui sont appliquées.

1. Introduction. — On sait que la mesure des amplitudes des impulsions de tension issues d'une chambre d'ionisation, d'un compteur proportionnel ou d'un photomultiplicateur permet de connaître l'énergie des particules détectées par ces appareils. Parmi les principaux dispositifs utilisés dans ce but, nous citerons les suivants :

1° *Les dispositifs à enregistrement photographique des impulsions.* — On utilise dans ce cas, soit un oscillographe électromécanique [1], soit un oscillographe cathodique. Les impulsions s'inscrivent avec leurs amplitudes sur un film disposé devant l'oscillographe.

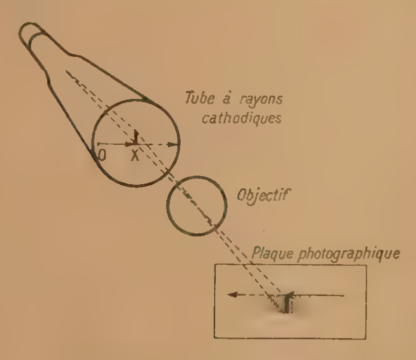


Fig. 1. — L'abscisse OX de la raie est proportionnelle à l'amplitude de l'impulsion.

Un appareil fondé sur un principe différent a été décrit récemment par J. Howard-Parsons [2]. Au passage de chaque impulsion, un tube cathodique projette, sur une plaque photographique, une raie dont la position est déterminée par l'amplitude de l'impulsion mais dont la longueur et la brillance sont constantes. Quand un grand nombre d'impulsions a traversé l'appareil, la statistique des amplitudes se ramène à des mesures d'opacité au microphotomètre (*fig.* 1).

2° *Les dispositifs purement électroniques.* — *a.* Le plus ancien de ces appareils est le discriminateur [3]. Cet appareil, intercalé entre le détecteur de particules et un dispositif de comptage, ne laisse passer que les impulsions dont l'amplitude est supérieure à une valeur réglable A que nous nommerons seuil.

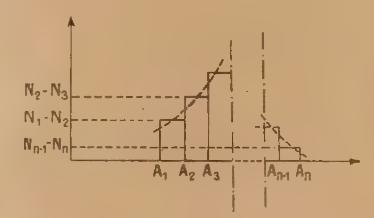


Fig. 2. — Répartition statistique des amplitudes.

On compte, pendant des intervalles de temps égaux, les impulsions dont les amplitudes dépassent les seuils A_1, A_2, ..., A_n. Soient N_1, N_2, ..., N_n les nombres correspondants trouvés. On en déduit les nombres d'impulsions N_1-N_2, N_2-N_3, N_{n-1}-N_n dont les amplitudes sont comprises entre A_1 et A_2, A_2 et A_3, ..., A_{n-1} et A_n, ce qui permet de tracer la courbe de répartition statistique des amplitudes (*fig.* 2). Ce procédé a, entre autres, les inconvénients suivants :

Les mesures de N_1, N_2, ..., N_n se faisant successivement exigent un temps relativement long, ce qui, dans certains cas, est très gênant.

L'erreur statistique moyenne dans la détermi-

nation de $N_i - N_{i+1}$ est égale à $\sqrt{N_i + N_{i+1}}$, ce qui conduit à une précision relative faible.

b. Le groupement de plusieurs discriminateurs suivis chacun par un dispositif de comptage permet l'enregistrement simultané des impulsions dont les amplitudes dépassent respectivement les p seuils choisis $A_1, A_2, \ldots, A_p$ $(A_1 < A_2 < \ldots < A_p)$. C'est là le principe des appareils utilisés actuellement.

On demande de plus à ces appareils d'effectuer directement les soustractions N_1-N_2, N_2-N_3, ... Cela revient à dire que chaque discriminateur n'actionne le dispositif de comptage correspondant que si l'impulsion reçue a une amplitude comprise entre son propre seuil A_i et le seuil A_{i+1}. On obtient ce résultat en faisant suivre les deux discriminateurs intéressés par un circuit que nous nommerons circuit de soustraction, ce dernier commandant le dispositif de comptage, comme le montre la figure 3.

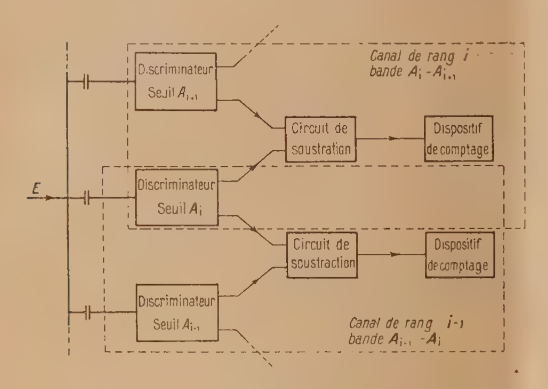


Fig. 3.

Nous nommerons « *canal* » l'ensemble de deux discriminateurs jumelés, du circuit de soustraction et du dispositif de comptage correspondants, et « *bande* » l'intervalle des tensions défini par les deux seuils des discriminateurs d'un canal.

Les appareils qui permettent le triage électronique des impulsions sont nommés généralement sélecteurs d'amplitudes d'impulsions. Cet article a pour but l'étude de ces appareils en ce qui concerne spécialement les circuits de soustraction.

Nous allons étudier le fonctionnement d'un sélecteur à un seul canal. En effet, les principes généraux d'un sélecteur à un seul canal s'étendent immédiatement à un sélecteur à un nombre quelconque de canaux. Nous désignerons par A_1 et A_2 les seuils des deux circuits de discrimination.

2. **Généralités.** — 1° *Discriminateurs.* — Chacun des deux circuits de discrimination d'un canal comprend en général un tube électronique, dont l'électrode de commande est polarisée en dessous de sa tension de cut-off par une source de tension réglable, couplé à un monovibrateur. Les impulsions à sélectionner sont appliquées à l'électrode de commande du premier tube par l'intermédiaire d'un condensateur. Quand l'amplitude d'une impulsion est suffisante pour que la tension instantanée de l'électrode de commande excède d'une quantité déterminée sa tension de cut-off, le monovibrateur déclenche et transmet un signal au circuit de soustraction. Soient U_s la tension instantanée de l'électrode de commande au-dessus de laquelle le monovibrateur déclenche et U_p la tension de polarisation. Le seuil du discriminateur a donc pour valeur

$$A = U_s - U_p.$$

Les tensions U_s et U_p doivent être particulièrement stables. Il est donc nécessaire de stabiliser avec soin les tensions d'alimentation des dicriminateurs, y compris les tensions de chauffage des tubes, surtout du premier. Pour que les variations relatives de A qui subsistent encore soient assez petites, on donne en général aux seuils des valeurs de l'ordre de quelques dizaines de volts et l'on est amené à amplifier suffisamment les impulsions qui sont fournies par le détecteur et dont les amplitudes excèdent rarement quelques dixièmes de volt.

2° Les impulsions appliquées au canal se classent en trois groupes tels que, si V désigne leur amplitude, $V < A_1$, $A_1 \leq V < A_2$ (second groupe), $A_1 < A_2 \leq V$ (troisième groupe). Seules les impulsions du second groupe doivent être comptées. L'élongation de toute impulsion du troisième groupe doit passer par la valeur A_1 au temps t_1, avant d'atteindre la valeur A_2 au temps t_2 (*fig.* 4). Pendant

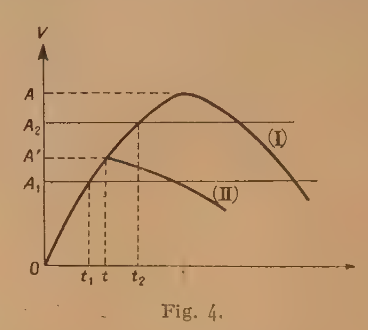


Fig. 4.

une partie de la durée de l'impulsion, à savoir celle qui est comprise entre t_1 et t_2 rien ne distingue cette impulsion d'une impulsion du deuxième groupe. Cependant, pour qu'elle ne soit pas enregistrée, on peut avoir recours à l'un des deux procédés suivants :

Le premier consiste à retarder le déclenchement du dispositif de comptage d'un délai Θ suffisant

pour permettre, à l'élongation de toute impulsion du troisième groupe d'atteindre la valeur A_2. Nous nommerons circuits à sélection quasi instantanée les circuits de soustraction qui fonctionnent selon ce principe.

Le second procédé consiste à compter l'impulsion dès que son élongation dépasse A_1 (1). Le coup compté est annulé par la suite si l'impulsion appartient au troisième groupe. Nous nommerons circuits à sélection différée les circuits qui fonctionnent selon ce principe.

Nous allons étudier quelques réalisations correspondants à chacun de ces deux procédés.

3. **Circuits à sélection quasi instantanée.** — 1° Notons tout d'abord que le délai Θ doit être calculé en fonction de A_1 et A_2 ainsi que du temps de montée des impulsions. Celui-ci dépend essentiellement du détecteur utilisé. Il peut être plus petit qu'une microseconde dans le cas d'un photomultiplicateur et plus grand qu'une milliseconde dans le cas d'une chambre d'ionisation.

2° Prenons comme exemple le « Pulse Analyser for Nuclear Research » décrit par Freundlich, Hincks et Ozeroff [4]. La figure 5 donne le schéma de principe d'un canal.

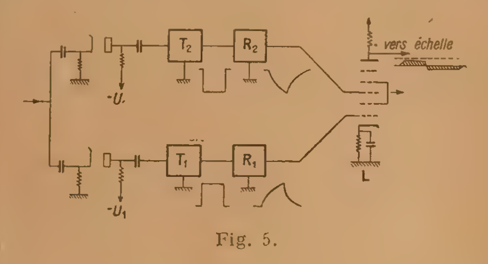


Fig. 5.

Dès que l'élongation de l'impulsion dépasse le seuil A_1, le monovibrateur T_1 déclenche. Il délivre une impulsion à la première grille du tube L. Le monovibrateur T_2 déclenche quand elle a dépassé A_2 et une deuxième impulsion de signe contraire est appliquée à la troisième grille de L. Ces deux impulsions montrées en figure 6, doivent s'annuler sur la plaque de L. Ce résultat est obtenu en donnant au temps de relaxation des monovibrateurs une valeur grande devant $t_2 - t_1$, et en « intégrant » les impulsions prises à la sortie des monovibrateurs à travers les filtres R_1 et R_2 constitués de résistances et de capacités. Les deux impulsions ne peuvent s'annuler exactement et il apparaît sur la plaque une impulsion d'amplitude insuffisante pour actionner l'échelle. L'inconvénient de ce procédé est évident.

(1) Nous nommerons élongation la valeur instantanée de la tension par opposition à l'amplitude de l'impulsion qui est sa valeur maximum.

C'est le temps de relaxation des monovibrateurs qui détermine le pouvoir de résolution de l'appareil. Pour que le fonctionnement soit sûr, ce temps doit être de l'ordre de dix fois supérieur à Θ. Il faut

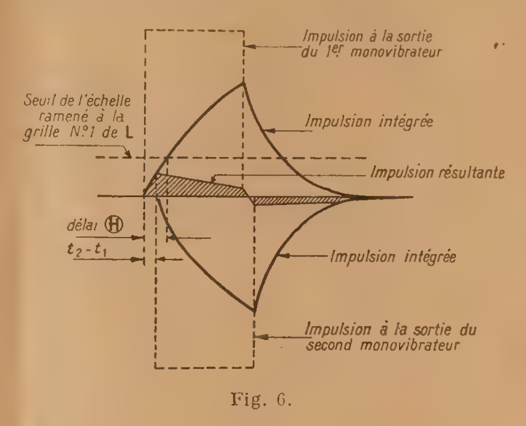


Fig. 6.

retenir pour la mise au point des circuits la valeur de Θ correspondant aux impulsions qui, parmi celles qu'on désire appliquer à l'appareil, ont le temps de montée le plus long. Dans le cas où l'appareil serait utilisé pour la sélection d'impulsions de temps de montée et de durée beaucoup plus courts, le taux moyen de comptage resterait limité à la valeur déjà fixée.

3° Dans l'appareil décrit par Westcott et Hanna [5] les moyens mis en œuvre sont très différents.

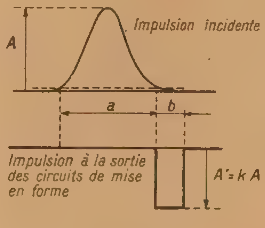


Fig. 7.

Les circuits sélecteurs proprement dits sont précédés de circuits de mise en forme des impulsions. Ceux-ci délivrent aux discriminateurs des impulsions rectangulaires d'amplitudes proportionnelles à celles des impulsions à sélectionner et de durée b constante (égale à 80 μs), *mais après un délai a égal à la durée des impulsions incidentes.* La figure 7 montre ces deux types d'impulsions.

Le fonctionnement d'un canal, dont le schéma de principe est montré par la figure 8, est alors le suivant :

Quand l'amplitude d'une impulsion appliquée à

l'entrée du canal dépasse A_1 (et non A_2) elle fait apparaître une impulsion négative rectangulaire de même durée et de grande amplitude (— 270 V) sur la plaque du tube L_3. Cette impulsion, dérivée

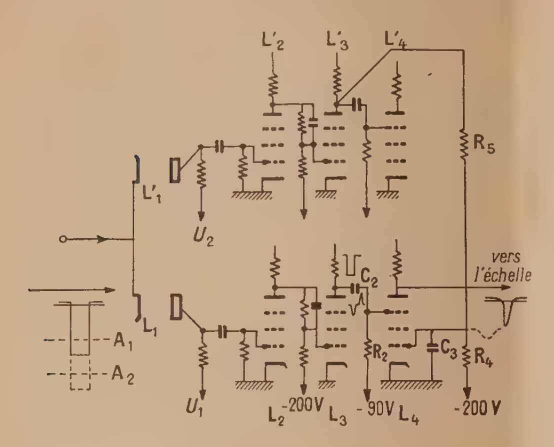


Fig. 8.

par le circuit C_2-R_2, est appliquée au suppressor du tube L_4 polarisé à — 90 V. (La grille 1 de ce tube est à un potentiel voisin de 0.) C'est la partie positive de l'impulsion dérivée qui débloque le tube, comme le montre la figure 9. Une impulsion négative apparaît sur la plaque et déclenche l'échelle.

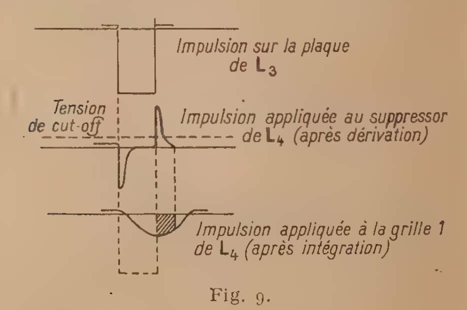


Fig. 9.

Quand l'amplitude d'une impulsion appliquée à l'entrée du canal dépasse A_2, la chaîne supérieure L'_2-L'_3 fonctionne de la même façon et une impulsion négative rectangulaire apparaît dans la plaque de L_3. Elle est envoyée à la grille n° 1 de L_4 à travers le réseau R_4-R_5-C_3 qui l'élargit (*fig.* 9). La grille de L_4 est donc fortement négative pendant un intervalle de temps qui recouvre largement la durée de l'impulsion positive reçue par le suppressor de sorte qu'aucun signal n'apparaît sur la plaque de L_4.

L'avantage de ce procédé sur le précédent est de conduire à un temps de résolution très peu supérieur à 80 μs pour des impulsions de durée petite devant 80 μs ([2]). Il fonctionne également avec des impulsions de durée aussi longue que 1 500 μs (d'après les auteurs). Son principal inconvénient est d'exiger un traitement quelque peu délicat de l'impulsion dans les circuits de mise en forme avec les risques de distorsion qu'un tel traitement comporte.

4. **Circuits à sélection différée.** — Le principe de ces circuits est de compter toutes les impulsions dès qu'elles dépassent A_1; mais les impulsions qui, parmi elles, dépassent A_2 sont ensuite retranchées du total. Puisqu'aucun retard n'est à envisager, le fonctionnement de l'appareil peut être rendu indépendant, entre des limites très large du temps de montée des impulsions.

Examinons deux méthodes possibles :

Première méthode. — L'impulsion est comptée dès que son élongation dépasse A_1 et l'échelle avance d'une unité. Dès que l'élongation de l'impulsion dépasse A_2, une impulsion est envoyée dans cette même échelle de *sorte qu'elle recule d'une unité* [6]. Le temps de résolution de l'appareil est déterminé par la durée des impulsions. Dans le cas où cette durée serait petite, le temps de résolution serait celui de l'échelle.

Deuxième méthode. — L'impulsion est comptée dès que son élongation dépasse A_1. Le coup compté est conservé, l'échelle a donc fait une erreur d'une unité par excès mais, dès que l'impulsion dépasse A_2, un tube qui commande l'échelle est fermé et reste dans cet état de façon que la prochaine impulsion comprise dans la bande ne soit pas comptée. L'erreur commise est donc corrigée et le même processus peut se répéter. Ce procédé peut donner lieu à une erreur de ± 1 coup suivant l'état initial ou final du système verrouilleur.

Nous avons mis au point un sélecteur à un canal fonctionnant de cette façon. Son schéma de principe est montré par la figure 10.

Le verrouillage ou l'ouverture du tube L_5 qui commande l'échelle est effectué par une bascule à deux tubes couplés par les suppressors. Quand le tube L_4 est fermé, la grille de L_5 est polarisée au voisinage du cut-off. Quand L_4 est ouvert, la forte chute de tension aux bornes de la résistance de plaque est transmise à la grille de L_5 dont le potentiel est alors à quelques dizaines de volts au-dessous du cut-off.

Les tubes L_1 et L_2, L'_1 et L'_2, sont montés en monovibrateurs.

Quand l'élongation d'une impulsion appliquée à

([2]) Toutefois les auteurs indiquent que pour des impulsions de temps de montée inférieur à 1 μs, des modifications doivent être apportées à l'appareil.

l'entrée dépasse A_1 le monovibrateur L_1-L_2 déclenche. L'impulsion négative sur la plaque de L_2 est appliquée à travers C_1 à la grille de L_4 que *nous supposons initialement fermé* et qui demeure dans cet état.

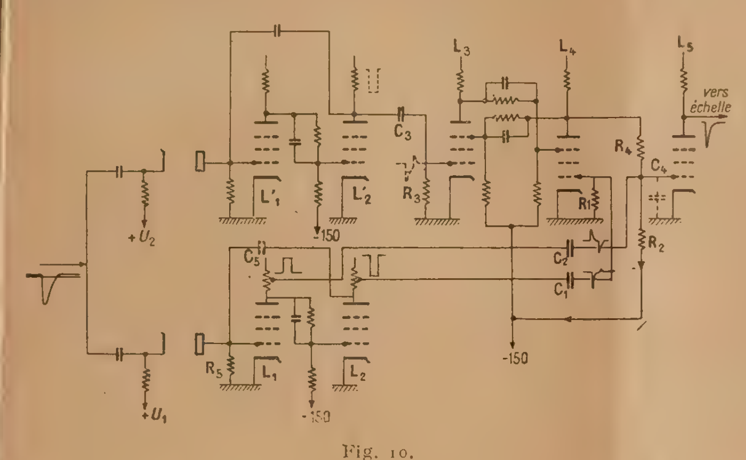


Fig. 10.

L'impulsion positive sur la plaque de L_1 est appliquée à travers C_2 à la grille de L_5 d'où l'apparition d'une impulsion négative sur sa plaque qui déclenche l'échelle.

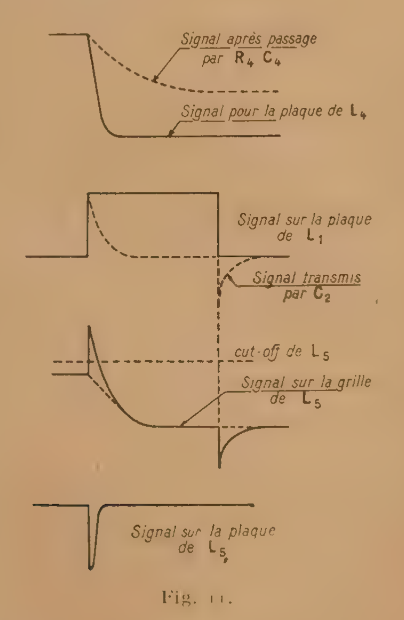


Fig. 11.

Supposons maintenant que l'élongation de l'impulsion appliquée à l'entrée dépasse A_2. Le monovibrateur L'_1-L'_2 déclenche, et l'impulsion négative qui apparaît sur la plaque de L'_2 est appliquée à la grille de L_3 à travers la capacité C_3. L'amplitude de l'impulsion transmise est suffisante pour bloquer ce tube. La bascule change d'état d'équilibre car l'impulsion reçue par la grille de L_4 et provenant de l'autre monovibrateur a une amplitude et une durée trop faible pour s'opposer à ce mouvement. Le tube passe de l'état « fermé » à l'état « ouvert » et le potentiel grille de L_5 s'effondre mais à une vitesse limitée par la capacité C_4. L'impulsion positive provenant de la plaque de L_1 est transmise à l'échelle avant que le tube ne soit « verrouillé ». La figure 11 montre la succession de ces différents états. Une nouvelle impulsion d'amplitude plus grande que A_2, ne peut plus être transmise. Le tube L_5 reste bloqué car la bascule ne change pas d'état. Si maintenant une impulsion d'amplitude comprise entre A_1 et A_2 survient l'impulsion négative transmise à la grille de L_4 bloque ce tube et la bascule change d'état d'équilibre. L'impulsion positive reçue par la grille de L_5 n'est pas transmise comme le montre la figure 12. Le coup par excès est donc annulé et l'appareil est revenu à l'état initial.

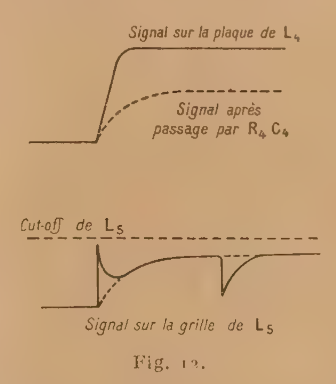


Fig. 12.

5. **Réalisation pratique.** — Le schéma de réalisation de notre appareil est montré par la figure 13. Ce schéma diffère sur plusieurs points du schéma de principe de la figure 10.

La diode de discrimination de la figure 10 est remplacée par la double triode L_1-L_2. La grille de L_1 est polarisée en dessous de sa tension de cut-off. Le seuil du discriminateur est sensiblement égal à la d. d. p. entre les grilles des triodes L_2 et L_1. Il est réglable entre 5 et 100 V en agissant sur la tension de polarisation de la grille de L_1. Quand une impulsion positive appliquée a une amplitude suffisante, L_1 se met à conduire et le courant plaque de L_2 diminue. L'impulsion positive qui apparaît ainsi sur

la plaque de L_2 déclenche le monovibrateur si son amplitude dépasse une certaine valeur, seuil du monovibrateur.

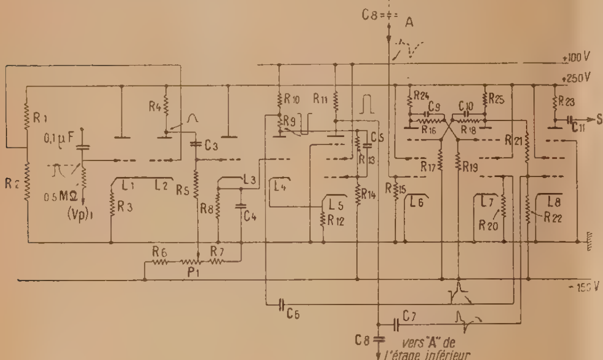


Fig. 13.

R_1 : 25 kΩ	R_{10} : 0,7 kΩ	R_{18} : 550 kΩ
R_2 : 20 kΩ	R_{11} : 5	R_{19} : 450 kΩ
R_3 : 30 kΩ	R_{12} : 500 Ω	R_{20} : 100 kΩ
R_4 : 3 kΩ	R_{13} : 100 kΩ	R_{21} : 550 kΩ
R_5 : 0,5 MΩ	R_{14} : 250	R_{22} : 370 kΩ
R_6 : 100 kΩ	R_{15} : 100	R_{23} : 20 kΩ
R_5 : 3 kΩ	R_{16} : 550	R_{24} : 50 kΩ
R_8 : 50 kΩ	R_{17} : 450	R_{25} : 50 kΩ
R_9 : 9 kΩ		
	P_1 : 1 kΩ	
	C_5 : 20 pF	
C_1 : 0,1 µF	C_6 : 100 pF	C_{10} : 30 pF
C_2 :		
C_3 : 0,1 µF	C_7 : 50 pF	C_{11} : 1000
C_4 : 50 pF	C_8 : 100 pF	
L_1 : 6 J 6	L_4 : ECC 40	L_7 : PMO 7
L_2 : »	L_5 : PMO 7	L_8 : »
L_3 : ECC 40	L_6 : »	

Erratum. — Figure 13 : Les écrans des tubes L_6 et L_7 sont connectés à la source de tension « + 100 V » et non à la source de tension « + 250 V ».

Le monovibrateur (L_4-L_5) est à couplage cathodique, L_4 étant normalement bloqué et L_5 ouvert. Il est attaqué par l'intermédiaire d'un tube à cathode asservie (L_3). La capacité C_4 est destinée à allonger les impulsions appliquées à la grille de L_3 quand celles-ci sont de très courte durée, de l'ordre de la microseconde. Nous avons vérifié que le seuil du monovibrateur, vu de la grille de L_3, est indépendant de la forme et de la durée des signaux appliqués dans des limites très larges allant d'un signal « continu » à des impulsions aussi courtes qu'une microseconde. On peut ajuster ce seuil autour de la valeur de 6 V au moyen du potentiomètre P_1.

Les variations de la tension de chauffage de la première double triode (L_1-L_2) ont une faible influence sur la valeur du seuil, car les actions des éléments L_1 et L_2 se contre-balancent partiellement. Le seuil du monovibrateur dépend de façon sensible de la tension de chauffage des tubes qui le composent (L_3-L_4 et L_5) mais, vues de l'entrée du discriminateur, ses variations sont réduites dans un rapport égal au gain du premier tube (L_1-L_2), gain qui est de l'ordre de quatre. Dans ces conditions, les variations du seuil du discriminateur sont de l'ordre de 0,1 V quand la tension de chauffage des tubes varie de 10 pour 100.

Le tube L_7 qui commande le tube de sortie (L_8) est attaqué par les impulsions négatives provenant du premier tube du monovibrateur (L_4). Contrairement au schéma de principe de la figure 10 la grille du premier tube de la bascule (L_6-L_7) est attaquée par les impulsions positives prises sur la plaque du tube L_5 du monovibrateur de la chaîne supérieure. Ces impulsions dérivées par la capacité C_8 sont écrétées par la grille du tube L_6 et c'est l'impulsion négative de « retour » qui bloque L_6.

Conclusion. — Le fonctionnement de l'appareil est indépendant de la durée et de la forme des impulsions qui lui sont appliquées et reste correct tant que cette durée est supérieure à 1 µs. Le temps de résolution, c'est-à-dire l'intervalle de temps qui suit le passage d'une impulsion pendant lequel l'appareil ne peut enregistrer une nouvelle impulsion est déterminé par le temps que met la bascule pour changer d'état. Ce temps est de l'ordre de 10 à 20 µs. L'utilisation d'une bascule rapide doit permettre de réduire ce temps à quelques microsecondes.

Nous tenons à remercier M. Surdin, chef du Service des Constructions électriques au Commissariat à l'Énergie atomique pour ses encouragements et ses conseils, ainsi que M. A. Rogozinski pour l'aide qu'il nous a apportée dans la critique de la rédaction de ce travail.

Manuscrit reçu le 3 mars 1950.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] WYNN-WILLIAMS C. E. et WARD F. A. B. — *Proc. Roy. Soc. G. B.*, 1931, A **131**, 391.

[2] HOWARD-PARSONS J. — *Proc. Inst. Radio Eng., G. B.*, 1949, 37, 564.

[3] *Voir* par exemple : LEWIS W. B., Electrical Counting. *Cambridge University Press*, 1942.

[4] FREUNDLICH, HINCKS et OZEROFF. — *Rev. Sci. Instr. U. S. A.*, 1947, **18**, 90.

[5] WESCOTT et HANNA. — *Rev. Sci. Instr. U. S. A.*, 1949, **20**, 181.

[6] REGENER H. — *Rev. Sci. Instr. U. S. A.*, 1946, **17**, 180. — MARTENS F. H. — *Rev. Sci. Instr. U. S. A.*, 1949, **20**, 424.

Il semble que H. Regener et F. H. Martens n'envisagent pas un sélecteur d'amplitude mais seulement une échelle pour additionner et soustraire.

LES QUALITÉS ET LE MÉCANISME D'ÉMISSION PHOTOÉLECTRIQUE DES COUCHES CÉSIUM-ANTIMOINE

Par W. VEITH.
Laboratoire d'électronique de l'Observatoire de Paris.

Sommaire. — Des couches photoélectriques de césium-antimoine sont produites par évaporation des constituants. La sensibilité photoélectrique et la conductibilité des couches sont mesurées à chaque stade de leur fabrication. Au maximum de sensibilité ces couches doivent être considérées comme des semi-conducteurs.

L'influence de l'addition d'oxygène est discutée.

1. **Introduction.** — Dans la recherche de substances possédant une grande sensibilité photoélectrique, on a abandonné de plus en plus les couches métalliques massives et les couches constituées par un dépôt monoatomique d'un métal alcalin, pour n'utiliser presque exclusivement que des couches constituées par des alliages ou des combinaisons d'éléments divers. Le fait que A. Sommer [1] a trouvé pour les couches Cs-Sb [2] un rapport de 3 (3 Cs pour 1 Sb), donne à penser que le grand rendement photoélectrique de ces cellules est dû à la formation d'un composé hétéropolaire, puisque Sb, d'après la place qu'il occupe dans le système périodique, peut être considéré comme un anion trivalent. J'ai essayé de prouver l'existence de cette combinaison à l'aide de la mesure de la conductibilité spécifique de la substance. Comme le montreront les résultats obtenus, la variation de la conductibilité est si grande (environ 10^8 fois plus grande que celle des métaux les plus conducteurs) que l'existence d'une telle combinaison ne peut plus être mise en doute. La couche Cs_3-Sb est particulièrement bien appropriée pour une telle étude fondamentale, en raison, d'une part, de sa grande sensibilité photoélectrique et d'autre part, du petit nombre de ses constituants. Cet exposé confirmera les résultats obtenus par Sommer; les méthodes de mesures que j'ai employées, permettront cependant d'expliquer d'une manière un peu plus complète le mécanisme photoélectrique de ces couches.

2. **Procédé de fabrication.** — Les couches utilisées furent préparées à l'aide d'un procédé mis au point à l'A. E. G.-Forschungs-Institut. Un filament en forme d'hélice contient un morceau de Sb; ce filament peut être introduit à volonté dans la cellule et chauffé de manière à évaporer du Sb. Le Cs qui se trouve dans une tubulure latérale peut être condensé sur le filament et évaporé ultérieurement. En outre, de petites quantités de O_2 peuvent être introduites pour la préparation et l'étude des couches plus sensibles Cs-Sb-O_2.

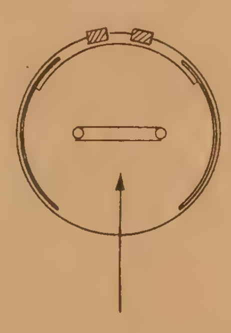


Fig. 1.

Les cellules avaient la forme indiquée dans la figure 1. La surface photosensible porte deux contacts de 15 mm de longueur et distants l'un de l'autre de 1,5 mm, servant à la mesure de la conductibilité. Les courbes indiquées, qui sont un choix parmi 65 courbes, se rapportent toujours à un flux lumineux ayant la direction de la flèche de la figure 1, les ordonnées représentent la sensibilité photoélectrique exprimée en microampères par lumen pour une lampe dont la température de couleur était d'environ 2 500° K.

3. **Propriétés semi-conductrices de la couche** Cs Sb. — Pour représenter la formation d'une couche d'après le procédé décrit précédemment, j'ai porté en abscisse l'élément évaporé (la quantité évaporée est inconnue). En ordonnées j'ai porté la sensibilité photoélectrique qui, par exemple dans la figure 2, présente quatre maxima

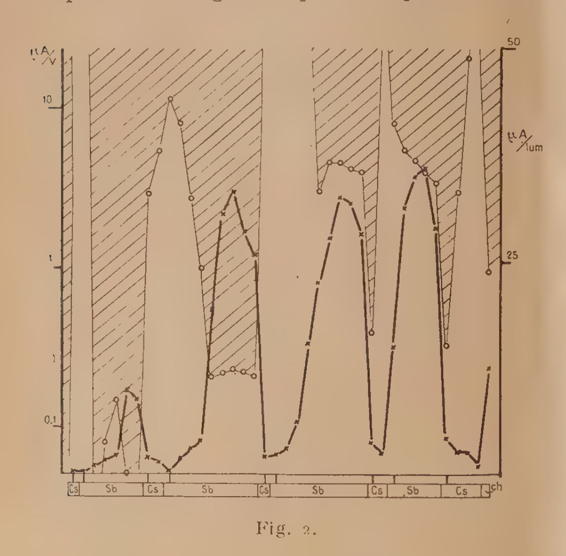


Fig. 2.

prononcés; j'ai porté également la conductibilité de la couche suivant une échelle logarithmique. On voit nettement qu'il y a pour chaque maximum de la sensibilité un minimum correspondant pour la conductibilité. La variation de cette conductibilité en fonction de la température est celle d'un semi-conducteur : on a en effet une augmentation de la conductibilité lorsque la température croît (voir *fig.* 11 : les mesures se rapportent à une couche sensibilisée par O_2). La valeur absolue de la résistance R des couches terminées est comprise entre 1 et 100 MΩ.

On a donc

$$R = \frac{0{,}15}{1{,}5\, d}\rho, \qquad \text{d'où} \qquad \frac{\rho}{d} = 10^7 - 10^9\ \Omega;$$

ρ résistivité de la couche et d épaisseur de la couche.

La résistance de ces couches est donc assez importante et la négligence de ce fait peut fausser complètement les mesures faites sur ces dernières.

Je voudrais maintenant signaler, dans un cas particulier, l'influence perturbatrice de cette grande résistance. Quand on emploie ces couches comme photocathode de télescopes électroniques, on est souvent surpris de la qualité inattendue des images obtenues. J'ai observé, par exemple, que la distortion en croissant qui affecte l'image de presque tous les systèmes électrostatiques, peut disparaître et même se transformer, lorsqu'on augmente beaucoup la brillance de l'objet, en distortion en barillet. L'effet est causé par la mauvaise conductibilité des couches, de sorte que la photocathode se charge positivement au centre et les équipotentielles au voisinage de celle-ci prennent la forme indiquée sur la figure 3*b*.

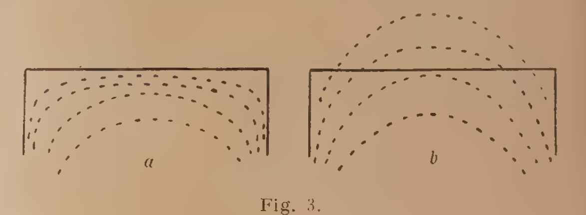


Fig. 3.

On peut facilement calculer le potentiel V_r pour un éclairement uniforme

$$V_r = V_R + j\frac{\rho}{d}R^2\left[\frac{1}{4}\left(1 - \frac{r^2}{R^2}\right)\right]; \qquad (1)$$

V_r, potentiel en un point situé à la distance r du centre de la cathode;
V_R, potentiel à la périphérie;
j, courant photoélectrique pour une surface de la cathode égale à 1 cm².

Pour un éclairement ponctuel au centre on obtient

$$V_r = V_R + j\frac{\rho}{d}r^2\left[\frac{1}{2}\ln\frac{R}{r}\right]. \qquad (2)$$

La formule (1) montre que le potentiel V_r est une fonction parabolique du rayon r, ce qui est une condition idéale pour obtenir une image de bonne qualité [3].

Considérons un exemple concret : soit une couche pour laquelle $\frac{\rho}{d} = 10^8$, $r = 2$ cm. Si l'on suppose, d'autre part, que la couche a une sensibilité de 50 μA : lm et que la cathode est soumise à un éclairement de 100 lx, on trouve que la variation du potentiel entre le centre et le bord de la cathode est

$$V_0 - V_R = j\frac{\rho}{d}R^2\frac{1}{4} = \frac{50.10^{-6}.100}{10^{+4}}.10^8.2^2.\frac{1}{4} = 50\ \text{V}.$$

Naturellement, la mauvaise conductibilité de ces couches influence la mesure de leur courant de saturation. On pourrait même songer à évaluer la conductibilité à l'aide des formules (1) et (2) en mesurant le courant de saturation.

Dans quelle classe de semi-conducteur doit-on ranger les couches de Cs_3Sb ? On peut penser qu'il s'agit du réseau fondamental de Cs_3Sb contenant un défaut ou un excès de Cs. Il semble plus raisonnable d'admettre la présence d'un excès de

césium, puisqu'il s'agit de l'effet photoélectrique extérieur qui est dû à Cs; on retrouve ainsi les idées développées par de Bœr [4], d'après lesquelles la photoélectricité de ces couches serait due à des atomes de Cs adsorbés à la surface des cristaux et dispersés à l'intérieur de ceux-ci.

Il me semble impossible de prouver la présence d'un excès de Cs par des moyens chimiques. Il m'a semblé, par contre, possible de voir si le maximum de sensibilité correspondait exactement au minimum de conductibilité, ce maximum se produisant pour la composition stœchiométrique. D'après l'idée selon laquelle la photosensibilité est due à un excès de Cs, le maximum de cette sensibilité sur les courbes représentatives devrait se trouver à gauche du point correspondant à la composition stœchiométrique exacte (dans le cas où l'on tend vers cette composition stœchiométrique par addition de Sb). Sur la figure 4 le point A correspond au minimum de

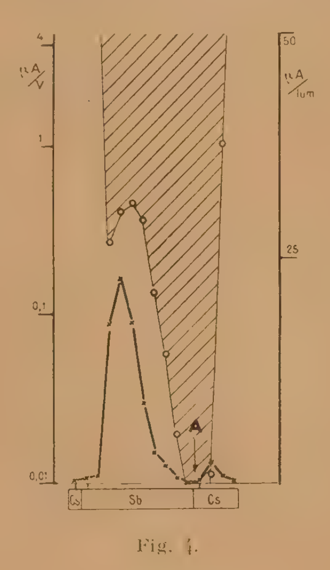


Fig. 4.

conductibilité. On voit également sur cette même figure que le maximum de sensibilité correspond à un excès de Cs.

Si, après avoir atteint le point A, on évapore du Cs, on n'obtient qu'un tout petit maximum de sensibilité. Je pense que le fait que ce maximum est petit, est dû à la mauvaise diffusion des atomes relativement volumineux de Cs, lorsqu'ils doivent pénétrer dans une couche déjà constituée. Cette constatation est très importante en pratique pour la formation des couches Cs_3-Sb : il faut avoir toujours un excès de Cs (*voir* aussi *fig.* 2). On remarque que, contrairement à nos hypothèses, la conductibilité décroît rapidement après les troisièmes et quatrièmes maxima (*fig.* 2), lorsqu'on ajoute du Cs. Ce fait peut être expliqué en remarquant que la diffusion du Sb précédemment évaporé peut être assez lente à la température ordinaire, ce qui rend difficile la mesure exacte du minimum de conductibilité.

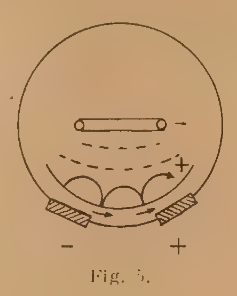


Fig. 5.

Les couches Cs_3-Sb étant semi-conductrices, on peut se demander si ce semi-conducteur est photosensible [5]. Pour la recherche d'un effet photoélectrique interne j'ai utilisé le circuit qui m'avait déjà servi à la mesure de la conductibilité. L'anode est portée à un potentiel négatif de —100 à —200 V de manière à éviter la sortie des électrons. La différence de potentiel existant entre les deux contacts

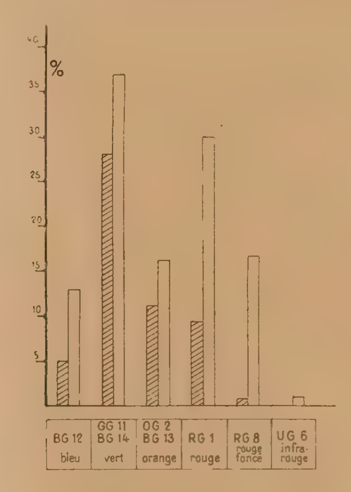


Fig. 6.

est petite (0,2-2 V). Malgré ces précautions, il n'est pas exclu que les électrons puissent avoir une trajectoire dans le vide analogue à celle qui est représentée sur la figure 5. On peut cependant espérer séparer les deux effets par la mesure de la sensibilité spectrale, car il est légitime de supposer que l'effet photoélectrique extérieur a une longueur d'onde limite plus courte. Le résultat est représenté sur la figure 6. L'effet interne est faible,

mais on obtient quand même pour un éclairement de 100 lx une augmentation par un facteur 5 de la conductibilité. On voit sur la figure 6 que la sensibilité photoélectrique extérieure est nettement inférieure dans le rouge à la photoconductibilité, cette dernière ne s'étendant pas, cependant, très loin dans l'infrarouge. Toutes les expériences faites pour augmenter le courant photoélectrique extérieur en améliorant la conductibilité transversale ou longitudinale par l'effet interne ont échoué.

4. **Sensibilisation par l'oxygène.** — La question de la sensibilisation des couches Cs_3Sb par l'oxygène est d'un grand intérêt pratique, puisqu'on peut obtenir ainsi des couches très stables et très sensibles.

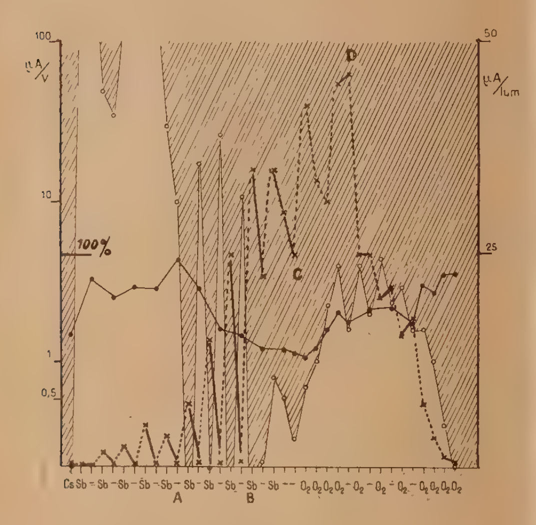


Fig. 7.

L'addition d'oxygène n'augmente pas toujours la sensibilité. Son action est favorable dans le cas, où la couche possède un excès assez important de Cs (*fig.* 7) et défavorable, si l'on a déjà dépassé l'état de sensibilité maximum (*fig.* 8).

Les résultats indiqués sur la figure 7 se rapportent à des mesures faites, soit immédiatement, soit quelques minutes après l'addition d'un élément. (Dans les autres figures les mesures ont été faites quelques minutes après l'addition de l'un ou l'autre des éléments et les valeurs portées correspondent, par conséquent, à un état d'équilibre). On voit, par exemple, que chaque addition de Sb entre A et B correspond à une augmentation de sensibilité et à une diminution importante de la conductibilité. Si l'on attend quelques minutes, ces dernières reprennent des valeurs voisines de celles qu'elles avaient auparavant. Après le point C, qui ne correspond pas encore au maximum de

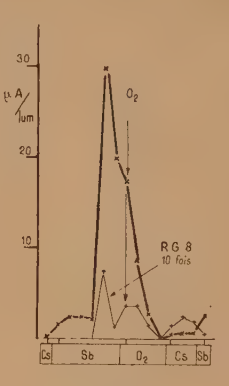


Fig. 8.

sensibilité, O_2 augmente considérablement la sensibilité, mais augmente également la conductibilité (*voir* aussi *fig.* 10). La figure 8, au contraire, montre

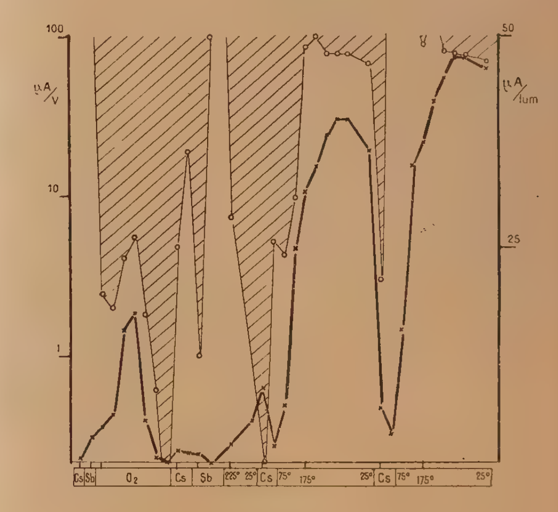


Fig. 9.

une diminution très rapide de la sensibilité par addition d'oxygène à une couche manquant de Cs. Remarquons que la sensibilité dans le rouge augmente dans tous les cas (*fig.* 8, courbe RG 8).

Les couches obtenues, immédiatement après l'addition de O_2, ne sont pas très stables; l'addition ultérieure de Cs et de Sb permet de les stabiliser. On peut partir soit d'une couche Cs_3Sb que l'on oxyde ultérieurement (*fig.* 9), soit d'une couche Cs_2O qu'on termine par addition alternative de Cs et

de Sb (*fig.* 10). Les couches sont semi-conductrices (*fig.* 11), (la conductibilité croît avec la température). La sensibilité photoélectrique, par contre, décroît lorsque la température augmente. En ce qui concerne la sensibilité spectrale, celle-ci augmente dans le rouge, ce qui est important, par exemple, pour la télévision. Le tableau I traduit les résultats obtenus.

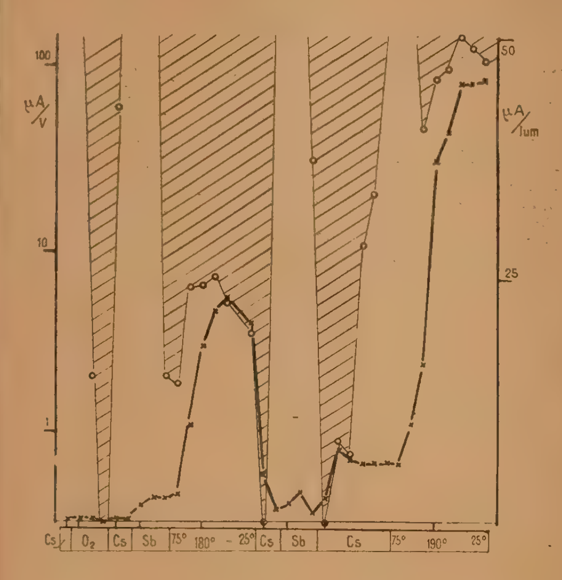


Fig. 10.

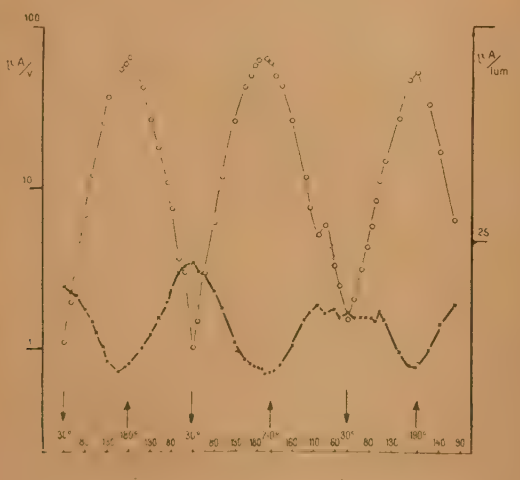


Fig. 11.

TABLEAU I.

Filtre.	Couleur.	A.	B.	C.
		Sensibilité en pour 100 de la sensibilité totale.		
BG 12............	Bleu	12	10	3,7
GG 11 + BG 14....	Vert	28	32	33
OG 2 + BG 13....	Jaune	5	11,5	18
Rg 1............	Rouge	0	14	21
RG 8............	Rouge foncé	0	0	5
UG 8............	Infrarouge	0	0	0

A. Cs_3Sb (40 μA : lm).
B. Avec peu de O_2 (105 μA : lm).
C. Avec beaucoup de O_2 (30 μA : lm).

5. **Discussion des résultats.** — Comment peut-on expliquer cette augmentation de sensibilité et de conductibilité ? On peut songer d'abord à une diminution du travail d'extraction due à l'action d'oxygène. Une telle diminution à lieu, mais elle ne peut pas expliquer entièrement les résultats obtenus. Sur la figure 10 la couche constituée initialement de Cs_2O a été terminée par addition répétée de Cs et de Sb : on aboutit néanmoins à une couche sensible dans le rouge, de sorte qu'il ne peut s'agir d'une pellicule superficielle de Cs_2O. Remarquons, d'autre part, que l'augmentation de conductibilité observée n'a aucun rapport avec une diminution du travail d'extraction.

Pour trouver une interprétation des résultats obtenus, j'ai étudié une couche Cs_2O, Cs (*fig.* 12). (Cette couche a été faite dans les conditions identiques à celles dont les résultats sont traduits dans la figure 7). On constate : au maximum de sensibilité la couche est très isolante (*fig.* 12, A et B), elle est sensible dans le rouge et l'infrarouge (60 pour 100 RG 8) et l'on peut mettre en évidence un début d'émission thermique pour des températures relativement basses (environ 50° C). Mais dans ce cas la sensibilité maximum n'est que le 1/40ᵉ de celle des couches Cs_3Sb.

L'influence de l'oxygène pourrait conduire, d'autre part, par oxydation de la combinaison Cs_3Sb à la libération à l'intérieur du réseau cristallin d'atomes de Sb dont l'action serait identique à celle de Ag, ajouté dans les couches Cs_2O, Ag, Cs. Par exemple, une addition de Ag dans la couche Cs_2O, Cs, représentée dans la figure 12, augmenterait la sensibilité par un facteur d'environ 10-20 (selon des expériences personnelles faites à l'A.E.G.-Forschungs-Institut, 1942-1943) [6].

Si une partie de Sb devait être considérée comme élément activateur (comme Ag), il faudrait qu'il soit en excès, ce qui est très difficile à concilier avec la présence d'un excès de Cs. Je conclus donc que les expériences faites ne suffisent pas à donner une idée définitive du mécanisme de ces couches complexes.

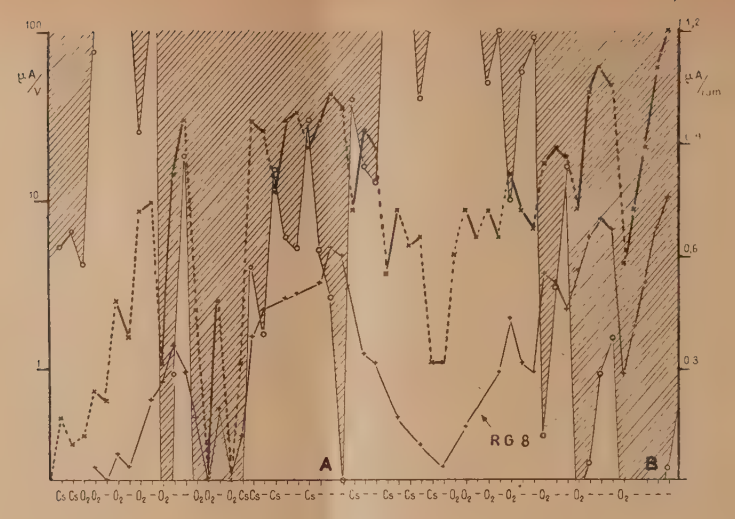


Fig. 12.

6. **Couches transparentes.** — Une série d'expériences a été faite pour trouver les conditions optima d'émission d'électrons dans la direction de la lumière incidente, ce qui est très important dans beaucoup de cas pratiques.

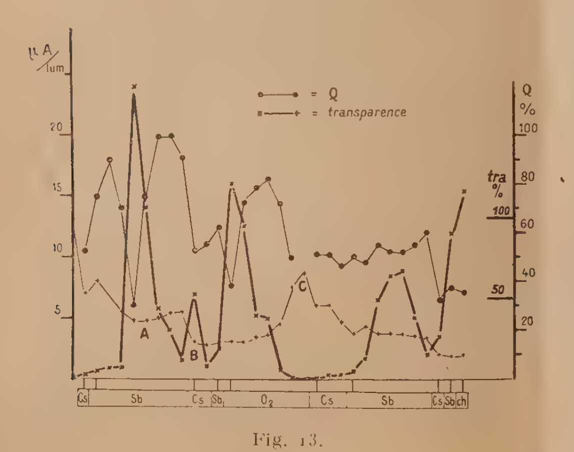


Fig. 13.

Le quotient Q des sensibilités photoélectriques mesurées, d'une part, lorsque la lumière traverse la couche et d'autre part, lorsque la lumière incidente frappe directement la couche sans absorption optique, permet de tirer des conclusions sur la profondeur de l'émission électronique.

L'absorption lumineuse de la couche a été mesurée également à l'aide d'une cellule de Cs_3Sb, ce qui m'a permis d'en déduire la transparence de la couche pour la partie intéressante du spectre. Cette transparence est petite pour le Cs; en ajoutant du Sb (*fig.* 13), la couche devient rouge et, en même temps, plus transparente. L'addition de Cs refait décroître la transparence (B), tandis que O_2 l'augmente à nouveau (C). En C la sensibilité est nulle, car la couche est tout à fait oxydée. Considérons sur la figure 13 la variation de Q : on constate que le premier maximum de sensibilité correspond à un minimum de Q (30 pour 100) et à une grande absorption (transparence $T = 36$ pour 100). En ajoutant du Sb, la transparence n'augmente pratiquement pas à partir de A, tandis que Q atteint presque la valeur de 100 pour 100.

L'explication serait la suivante : la sensibilité photoélectrique à la surface même est diminuée, tandis que l'intérieur de la couche n'est pas attaqué, de sorte que les électrons sont tous émis dans la profondeur de cette dernière. Lorsqu'on ajoute du Cs, on déplace la région sensible vers l'extérieur (B).

O_2 aussi augmente d'abord la sensibilité de la surface, mais la valeur de Q devient assez importante (73 pour 100), quoique la transparence n'ait pas changé du tout. Lorsque l'oxydation est continue, Q baisse, ce qui est encore une preuve que la région oxydée n'est pas limitée à la surface.

En fin de compte, après plusieurs manipulations et un chauffage ultérieur, le quotient Q reste voisin de 35 pour 100, bien que la transparence ne soit que 16 pour 100. Ces résultats montrent que les couches photoélectriques, utilisées par transparence, doivent être très minces (la couche de l'exemple de la figure 13 est beaucoup trop épaisse). La figure 7 montre également la variation de Q : il diminue par addition de Sb, mais atteint la valeur 70 pour 100 au maximum de sensibilité (D).

D'après toutes les expériences que j'ai faites, Q n'est jamais supérieur à 100 pour 100. C'est une preuve supplémentaire que les photoélectrons ne sont pas extraits de préférence dans la direction des photons incidents.

7. **Conclusions.** – Bien que de nombreuses questions n'aient pas reçu une réponse entièrement satisfaisante, il semble cependant bien établi que la couche césium-antimoine n'est pas constituée par un alliage, mais par une substance semi-conductrice. La comparaison de cette couche avec la couche Cs_2O, Ag, Cs, montre qu'il y a entre elles des points communs, de sorte que l'on est tenté de généraliser, en disant que les couches photoélectriques très sensibles sont des semi-conducteurs. Il semble même nécessaire que ces couches ne soient pas métalliques, de manière que l'énergie du quantum incident puisse être transférée à un électron lié par intermédiaire des atomes de Cs isolés. Dans le cas d'un métal, l'énergie du quantum devrait être transférée directement à un électron libre, qui perdrait cette énergie très rapidement à cause des chocs de celui-ci avec le gaz d'électrons.

Je suis heureux de trouver ici l'occasion de remercier M. A. Lallemand, astronome à l'Observatoire de Paris, pour l'intérêt qu'il a bien voulu porter à ces travaux, ainsi que M. M. Duchesne pour l'aide qu'il a su apporter à la mise au point du texte français.

Manuscrit reçu le 17 mars 1950.

BILIBIOGRAPHIE.

[1] Sommer A. — *Proc. Phys. Soc.*, 1943, **55**, 145.
[2] Görlich P. — *Z. Physik*, 1937, **101**, 335.
[3] Veith W. — *Rev. Scient.*, 1948, 67-76.
[4] Bœr H. de. — Electron emission and adsorption phenomena, Cambridge, 1935.
[5] Maurer G. — *Z. Phys.*, 1941-1942, **118**, 104.
[6] *Voir* aussi Görlich P. — *Z. Physik*, 1940, **116**, 704.

LE JOURNAL DE PHYSIQUE ET LE RADIUM. TOME 11, AOÛT-SEPTEMBRE 1950, PAGE 513.

SPECTROGRAPHE A PRISME DE FÉRY POUR L'ULTRAVIOLET DE SCHUMANN

Par Mlle GILLES et M. VODAR.
Laboratoire de Physique-Enseignement, Sorbonne.

Sommaire. — Description d'un spectrographe à vide, à prisme autocollimateur de Féry et optique de fluorure de lithium, destiné à des mesures d'absorption dans l'ultraviolet de Schumann.

Les bandes d'absorption dans la région de Schumann jouent un rôle important dans les théories modernes et des études quantitatives plus étendues permettraient d'approfondir la connaissance des niveaux électroniques de bon nombre de molécules. En effet, N_2, H_2, CO, NO, les hydracides, les solutions aqueuses comme celles des halogénures alcalins par exemple, etc. présentent des bandes d'absorption dans la région de Schumann.

Nous avons monté un appareil destiné à l'étude de l'absorption des solides et des liquides. L'absorption de ces derniers se présentant sous la forme de bandes relativement larges, nous avons besoin d'un pouvoir de résolution moins important que pour des études de corps à l'état gazeux où il est nécessaire de déceler une structure fine.

Pour des mesures de spectrophotométrie, la diffusion qu'on élimine très difficilement des spectres des appareils à réseaux est très gênante. Nous avons pensé diminuer le fond continu et obtenir une diffusion minima en utilisant un appareil à prisme.

Le spectrographe que nous allons décrire est, à notre connaissance, le premier appareil à prisme autocollimateur de Féry [1] à optique de fluorures, destiné à l'étude de la région de Schumann. Il a été réalisé par les Établissements Beaudoin suivant les indications de l'un de nous (B. Vodar). C'est dans un montage réalisé par Frerichs (il n'est signalé

jusqu'à présent que par Bomke [2] qui en donne une description mais ne mentionne aucune mesure) qu'on trouve pour la première fois l'emploi d'un prisme autocollimateur dans un spectrographe pour l'ultraviolet de Schumann. Frerichs utilise un montage de Littrow. Les rayons tombant à travers le collimateur sur le prisme sont réfléchis sur la face arrière du prisme. A la limite de la région de Schumann également, on peut signaler le montage de Féry à optique de quartz utilisé par Dupuy [3] pour l'étude de la résonance de la vapeur de mercure excitée par la radiation 1849 et un montage que Harrison [4] compare au Féry et qui est constitué par un miroir concave placé dans un récipient d'eau, l'eau jouant le rôle de substance réfringente.

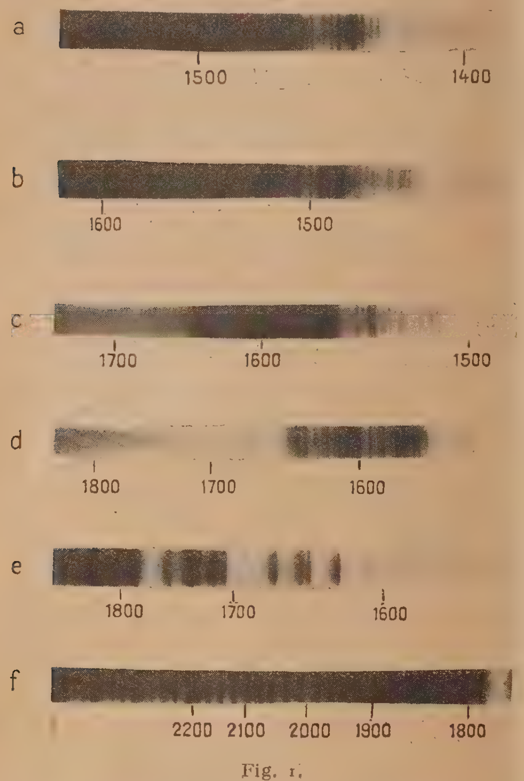


Fig. 1.
Échantillons des spectres obtenus :
a, b, c, d : Spectres de l'hydrogène pour différents temps de pose.
e, f : Spectres de CO.

Les avantages du montage de Féry que nous avons adopté sont les suivants :

Pour un prisme d'angle donné, la dispersion est doublée par suite de l'autocollimation, puisque les rayons le traversent deux fois. La grande inclinaison de la plaque augmente également la dispersion. Celle-ci, qui est toutefois plus faible que pour le dispositif de Littrow, est de 5 Å : mm entre 1 300 et 1 400 Å, de 6 Å entre 1 400 et 1 500 Å, de 7 Å entre 1 500 et 1 700 Å, de 12 Å entre 1 700 et 1 900 Å, la dispersion du fluorure de lithium croissant rapidement dans ce domaine lorsque la longueur d'onde diminue (à titre de comparaison, la dispersion d'un réseau de 570 traits : mm et 1 m de rayon de courbure est de 18 Å : mm dans le premier ordre).

La lumière réfléchie sur la face avant est en dehors de la plaque et se trouve automatiquement éliminée.

La lumière traverse une épaisseur de matière particulièrement faible puisque ce dispositif supprime les lentilles.

Comme dans les appareils à prisme en général, la luminosité est supérieure à celle des appareils à réseau, exception faite des réseaux à concentration et l'on sait que la question de la concentration pour les courtes longueurs d'onde est loin d'être résolue.

L'inconvénient du prisme de Féry est son astigmatisme, mais le calcul [5] montre qu'avec un faible indice comme celui du fluorure de lithium et un prisme de 45 mm de hauteur, la grandeur de l'image qui forme le spectre serait de l'ordre de 10 mm. Avec une fente de 8 mm de hauteur, les pertes de lumières sont acceptables. Toutefois l'astigmatisme empêche l'utilisation d'un double faisceau. Aussi avons-nous prévu une disposition mécanique permettant d'utiliser également un montage de Littrow.

Le prisme utilisé (22° 30′) est en fluorure de lithium fabriqué par la « Harshaw Chemical Co » et il a été poli par les Établissements Jobin et Yvon. La couche réfléchissante est un film d'aluminium déposé par évaporation dans le vide à l'Institut d'Optique. Les rayons de courbure des faces du prisme sont de 90 mm pour la face d'entrée concave, de 833 mm pour la face réfléchissante convexe. Nous avons utilisé également un prisme de fluorine de rayons 920 et 850. Pour le quartz, l'indice moyen étant plus élevé, il suffira, si l'on veut conserver sensiblement la même distance fente-prisme, d'augmenter les rayons de courbure des faces de 2 à 3 pour 100, soit par exemple, 940 et 866 au lieu de 920 et 850. On pourrait envisager d'utiliser dans le Schumann, certains échantillons de quartz cristallisé qui permettent d'atteindre une longueur d'onde de l'ordre de 1 500 Å [6].

Les données sur les pouvoirs réflecteurs dans l'ultraviolet de Schumann sont assez contradictoires. Les meilleurs réflecteurs semblent être l'aluminium et le platine [7, 8]. Nous avons adopté l'aluminium, nous réservant d'essayer le platine par la suite.

La valeur du dépôt réfléchissant dépend beaucoup du polissage du prisme. Un polissage défecteux entraîne des irrégularités dans la formation de la couche d'aluminium et il en résulte une diffusion

gênante. Nous avons rencontré cette difficulté avec un premier prisme de fluorine naturelle. Les techniques de polissage du fluorure de lithium ne semblent pas encore complètement au point, mais nous avons obtenu des résultats satisfaisants avec le fluorure de lithium poli, comme il a été dit plus haut, par la maison Jobin et Yvon. Nous avions craint que les difficultés de polissage du fluorure de lithium ne constituent un écueil insurmontable actuellement, à la réalisation d'un prisme de Féry dans l'ultraviolet de Schumann.

La description complète du spectrographe sera donnée ailleurs. Il se compose essentiellement de deux parties : une partie avant fixe qui porte la fente et différents rodages et qui contient le porte-chassis, une partie arrière en forme de cloche, mobile sur des rails, qui contient le prisme et son support. L'ensemble a une longueur d'environ 1 m et un diamètre moyen d'environ 35 cm.

Le prisme est placé sur un support qui permet le réglage du parallélisme de l'arête du prisme et de la fente, au moyen d'une bille centrale, de deux vis et de deux ressorts de rappel. Le support est susceptible d'un mouvement de rotation autour d'un axe central et d'un mouvement de translation parallèle à l'axe de l'appareil.

On utilise généralement des plaques Guilleminot superfulgur sensibilisées avec une solution à 2 pour 100 de salicylate de soude dans l'alcool méthylique ou des plaques Ilford Q_1. La plaque de format 9 × 12 cm, peut recevoir 12 spectres de 3 mm avec 3 mm d'espacement ou 24 spectres côte à côte. La plaque est placée dans un châssis porté par un porte-châssis à l'avant du spectrographe. L'inclinaison du chassis sur l'axe du spectrographe est commandé par un rodage. Une fente, pratiquée dans le porte-châssis, limite l'arrivée de la lumière sur la plaque. Un rodage muni d'un compteur de tours, permet de déplacer verticalement la plaque devant la fente et de compter le nombre de spectres exécutés. Un obturateur est constitué par un volet se déplaçant devant la fente. Tous les mouvements sont commandés par des rodages et transmis par des tiges à coulisse montées à cardan.

Un dispositif de tourelles destiné à être placé devant la fente et devant contenir les lentilles et les cuves d'absorption est actuellement en construction.

Manuscrit reçu le 26 avril 1950.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Féry Ch. — *J. de Physique*, 1910, **9**, 762.
[2] Bomke M. — *Physik. Z.*, 1936, **37**, 222.
[3] Dupuy M. — *Ann. Physique*, 1945, **20**, 177.
[4] Harrison G. — *Rev. Sc. Instr.*, 1934, **5**, 149.
[5] Vodar B. — *Revue d'Optique*, 1942, **21**, 97.
[6] Gilles A., Beauplé R., Romand J. et Vodar B. — *C. R. Acad. Sc.*, 1949, **229**, 876.
[7] Johnson B. K. — *Proc. Phys. Soc.*, 1944, **53**, 258.
[8] Banning M. — *J. Opt. Soc. Amer.*, 1942, **32**, 98.

L'ÉTAT ACTUEL DE LA THÉORIE DE LA DIFFUSION DES RAYONS X AUX PETITS ANGLES

Par G. FOURNET et A. GUINIER.
Conservatoire National des Arts et Métiers.
Office National d'Études et Recherches aéronautiques.

Sommaire. — 1° Pour les ensembles de particules identiques et éloignées, la théorie est bien connue et permet d'obtenir, à partir des données expérimentales, le rayon de giration des particules.

2° Ensemble de particules non identiques et éloignées. Même dans le cas simple où les particules sont géométriquement semblables, il est impossible de séparer les effets de la forme et de la répartition des tailles.

3° Ensemble dense de particules identiques. Sous certaines hypothèses, toujours vérifiées dans le cas de particules à symétrie sphérique, une nouvelle expression de l'intensité a été établie, faisant intervenir uniquement le facteur de structure, le potentiel des forces interparticulaires, le volume moyen offert à chaque particule et la température.

4° Enfin, on résume ce qu'on peut attendre de la théorie dans les cas les plus généraux (ensembles denses de particules non identiques, hétérogénéités quelconques de la densité électronique).

L'étude détaillée et quantitative des phénomènes de diffusion des rayons X aux très faibles angles a commencé il y a une douzaine d'années. Depuis cette époque, un nombre important de Mémoires ont paru, tant théoriques qu'expérimentaux.

La théorie des phénomènes a fait des progrès considérables : le domaine des applications possibles est ainsi élargi, mais certaines interprétations données au début paraissent maintenant trop hasardeuses.

Nous voudrions dans ce court Mémoire montrer à l'expérimentateur ce qu'il peut à l'heure actuelle espérer tirer avec sécurité de ses expériences, et dans quel cas il a intérêt à augmenter la précision de ses mesures.

L'interprétation d'un diagramme de diffusion centrale dépend des hypothèses qu'il est raisonnable de faire sur la structure de l'échantillon. Nous examinerons successivement les cas suivants :

1° ensemble de particules identiques et éloignées les unes des autres ayant une orientation commune ou quelconque;

2° ensemble de particules de tailles diverses, mais toujours assez éloignées les unes des autres;

3° ensemble dense de particules identiques;

4° ensemble de particules de tailles diverses et en système dense;

5° cas général d'un échantillon présentant des hétérogénéités quelconques de densité électronique.

1. Particules identiques et éloignées.

— Quand les particules sont réparties au hasard et assez éloignées pour que les distances entre leurs centres soient de l'ordre de plusieurs diamètres, l'intensité observée est la somme des intensités diffusées par chaque particule. Dans ces conditions, deux cas se présentent :

a. Les particules ont une orientation commune. — Il suffit de calculer la valeur de l'intensité diffusée par une particule dans la position considérée. Ce calcul est relativement aisé pour des formes de particules simples (sphère, ellipsoïde de révolution, cylindre, etc.). En général, la tache de diffusion sur le film ne possède pas de symétrie circulaire. Dans le cas d'ellipsoïdes de révolution par exemple, l'étude de la décroissance de l'intensité le long des diamètres permet de vérifier si la forme est bien ellipsoïdale et donne la valeur des deux axes ([2], p. 51).

b. Les orientations sont quelconques. — Il faut faire la moyenne des valeurs de l'intensité calculée pour chacune des orientations de la particule (les deux cas *a* et *b* sont identiques quand la particule est à symétrie sphérique).

On peut considérer que ce problème est maintenant résolu. De nombreuses formes de particules ont été étudiées par différents auteurs : sphères, ellipsoïdes de révolution, cylindres, disques, bâtonnets, etc.

Nous avons rassemblé ci-dessous les différentes formules qui ont été données. Nous désignons

l'angle de diffusion par 2θ et nous posons $h = \frac{4\pi \sin\theta}{\lambda}$. Les formules ci-dessous donnent l'intensité réduite $i(h)$ (fonction égale à 1 pour $h = 0$). Pour avoir l'intensité diffusée par N particules contenant chacune n électrons, il faut multiplier ces expressions par $N\, n^2\, I_e(h)$, $I_e(h)$ étant l'intensité diffusée par un électron.

Sphère de rayon R [1, 2, 9].

$$i(h) = \Phi^2(hR) = \left(3\,\frac{\sin hR - hR\cos hR}{h^3R^3}\right)^2 = \frac{9\pi}{2}\left[\frac{J_{\frac{3}{2}}(hR)}{(hR)^{\frac{3}{2}}}\right]^2.$$

Ellipsoïde de révolution d'axes $(2\,a, 2\,a, 2\,av)$ [2] :

$$i(h) = \int_0^{\frac{\pi}{2}} \Phi^2\left(ha\sqrt{\cos^2\theta + v^2\sin^2\theta}\right)\cos\theta\, d\theta.$$

Une autre formule a été donnée par Schull et Roess [3] au moyen des fonctions hypergéométriques.

Cylindre de révolution de rayon R et de hauteur $2\,H$:

$$i(h) = \int_0^{\frac{\pi}{2}} \frac{4J_1^2(hR\sin\theta)}{h^2R^2\sin^2\theta}\,\frac{\sin^2(hH\cos\theta)}{h^2H^2\cos^2\theta}\sin\theta\, d\theta.$$

Bâtonnet sans dimensions transversales, longueur $2\,H$ [5] :

$$i(h) = \frac{\mathrm{Si}\,2hH}{hH} - \frac{\sin^2 hH}{h^2H^2},$$

où Si désigne la fonction sinus intégral,

Disque plan (rayon R) [6] :

$$i(h) = \frac{8}{h^2R^2}\left[1 - \frac{2}{hR}J_1(hR)\right].$$

Quelle que soit la forme de la particule, les courbes d'intensité ont toujours la même allure (*voir* la courbe en pointillé de la figure) et possèdent comme approximation du second ordre aux très faibles angles

$$i(h) = e^{-\frac{h^2\rho^2}{3}}.$$

La longueur ρ possède une interprétation simple, c'est le *rayon de giration* de la particule [2].

De ceci il résulte :

1° Si l'expérience permet de s'approcher suffisamment près de l'angle de diffusion nul, on peut toujours, pour un ensemble de particules identiques d'orientation quelconque, trouver la valeur de leur rayon de giration. Si l'on connaît la forme de la particule, ce paramètre permet d'en calculer les dimensions.

2° Pour une valeur donnée du rayon de giration, la forme de la particule n'intervient que dans les « queues de courbe » vers les grands angles. Il est donc difficile d'espérer identifier de façon sûre la forme de la particule uniquement d'après la courbe expérimentale, car d'une part, les « queues de courbes » correspondant aux plus faibles intensités sont moins bien déterminées expérimentalement, et d'autre part, il y a peu de différences pour de grandes variations de la forme de la particule (par exemple il existe un ellipsoïde de révolution allongé qui donne une courbe semblable à un ellipsoïde de révolution aplati au quatrième ordre près).

3° Quand on compare les courbes de diffusion de deux formes de particules, il est essentiel de choisir deux particules de *même rayon de giration*.

Par exemple on comparera une sphère de rayon R à un ellipsoïde de révolution d'axes $2\sqrt{\frac{3}{2+v^2}}R$, $2\sqrt{\frac{3}{2+v^2}}R$, $2\,v\sqrt{\frac{3}{2+v^2}}R$ [2]. Certains auteurs [6] comparent des courbes réduites, telles qu'elles aient la même abscisse pour l'ordonnée $\frac{1}{2}$; mais c'est là un choix arbitraire qui ne permet pas d'isoler les influences de la forme et des dimensions des particules.

En conclusion, quand on est sûr que les particules sont identiques et forment un système peu dense, la théorie est bien connue et la diffusion centrale peut donner d'une façon simple des informations certes *partielles*, mais *précises*, sur les dimensions et les formes des particules.

Précisons que nous négligeons ici tous les phénomènes de diffusion multiple (diffusion par une particule de l'onde déjà diffusée par une autre). La question est à l'étude de divers côtés et il semble encore difficile d'en tirer des conclusions.

2. **Particules diverses en système peu dense.** — Aux très faibles angles, la courbe de diffusion peut se présenter en première approximation par

$$I(h) = I_0\, e^{-\frac{h^2\rho_m^2}{3}}.$$

ce qui permet de trouver expérimentalement un *rayon de giration moyen* ρ_m. Dans le cas où les particules possèdent toutes la même forme, ρ_m^2 est défini d'une façon simple [7] :

$$\rho_m^2 = \frac{\int_0^\infty \rho^5 p(\rho)\, d\rho}{\int_0^\infty \rho^3 p(\rho)\, d\rho},$$

$p(\rho)\, d\rho$ étant la masse des particules dont le rayon de giration est compris entre ρ et $\rho + d\rho$.

Cette formule montre que la moyenne ainsi définie donne un poids plus grand aux grosse

particules et ρ_m est pratiquement assez voisin de la valeur correspondant aux plus grosses particules. La mesure expérimentale ne pourra être faite que si les rayons de giration maxima sont assez petits pour que l'approximation admise soit encore valable dans le domaine des angles de diffusion accessibles à l'expérience.

De divers côtés, on a cherché à définir la répartition des tailles des particules à partir des phénomènes de diffusion centrale.

Jellinek, Salomon et Fankuchen [4] pour obtenir une représentation schématique de la répartition, ont essayé de décomposer la fonction expérimentale en une somme d'exponentielle

$$I(h) = I_0 \sum_k N_k n_k^2 \, e^{-\frac{h^2 \rho_k^2}{3}},$$

N_k étant le nombre de particules de rayon de giration ρ_k contenant chacune n_k électrons. Une telle décomposition est facile, mais les déterminations des ρ_k sont peu précises. Cette méthode n'est pas parfaite puisqu'elle utilise la forme exponentielle en dehors de ses limites de validité.

Des méthodes plus précises, ont été proposées [3] dans le cas où l'on suppose que les particules sont toutes semblables entre elles, c'est-à-dire qu'elles varient de taille mais non de forme. Si l'on se donne *a priori* une fonction de répartition des particules, il est facile de calculer la forme de la courbe d'intensité en utilisant les formules du paragraphe 1. On peut alors établir un réseau de courbes en faisant varier le ou les paramètres qui définissent la fonction de répartition des tailles et choisir parmi les courbes celle qui concorde le mieux avec les données expérimentales. Il est essentiel de remarquer que le résultat obtenu dépend des hypothèses faites (forme de la particule, forme de la fonction de répartition). *Il existe une infinité de groupements de particules qui correspondent à une courbe de diffusion donnée.* Tous ces ensembles de particules ont en particulier le même rayon de giration moyen. Par exemple considérons un ensemble d'ellipsoïdes de révolution tous identiques : il est possible de trouver une loi de répartition de particules sphériques telle qu'un ensemble ainsi constitué soit indiscernable du premier au moyen de la seule diffusion des rayons X.

En résumé, la détermination de la répartition des tailles d'un système hétérodispersé ne peut pas posséder de solution unique. De plus, les résultats obtenus au moyen d'un certain nombre d'hypothèses ne peuvent pas être précis étant donnée l'actuelle précision des déterminations expérimentales.

3. Ensembles denses de particules identiques. — On ne peut plus dans ce cas négliger les interférences entre les ondes diffusées par deux particules différentes. Le premier modèle qui montrait l'importance de cet effet est celui de Zernicke et Prins [8]. On dispose au hasard des sphères sur un segment de droite. Au fur et à mesure que le nombre de sphères augmente, la courbe de diffusion calculée varie régulièrement. Elle passe de la diffusion gazeuse (maximum pour l'angle nul) à la diffusion cristalline (maximum très net) par l'intermédiaire de la diffusion liquide (*voir* figure). Debye [9] traita

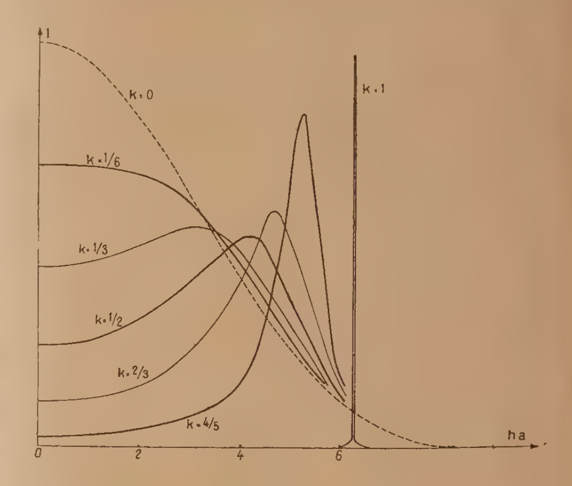


Fig. 1.
Intensité I du rayonnement diffusé en fonction de ha, a étant le diamètre des sphères. Le coefficient k désigne le rapport du diamètre a à la longueur moyenne offerte à chaque particule.

ensuite le cas général (espace à trois dimensions) pour des particules identiques à symétrie sphérique. L'arrangement mutuel des particules est alors caractérisé par une fonction de répartition $P(r)$ telle que la probabilité P de trouver à la fois une particule dans un élément de volume dv_k et une autre dans dv_j (à une distance r de dv_k), soit

$$P = \frac{dv_k}{v_1} \frac{dv_j}{v_1} P(r),$$

où v_1 est le volume moyen offert à chaque particule. Dans ces conditions le résultat de Debye est

$$I(h) = I_e(h) N F^2(h) \times \left\{ 1 - \frac{1}{v_1} \int_0^\infty [1 - P(r)] \frac{\sin hr}{hr} 4\pi r^2 \, dr \right\}, \quad (1)$$

N, nombre de particules;
$F(h)$, facteur de diffusion d'une particule.

Cette formule établie à l'origine pour les liquides est également valable dans le cas de la diffusion aux faibles angles pour des particules de plus grandes dimensions que les molécules d'un liquide. *Si l'on connaît $F^2(h)$ (que l'on peut déterminer expérimen-*

(alement par une étude du système dilué), on peut obtenir, au moyen d'une transformation de Fourier, *la fonction P (r)*.

La fonction $P(r)$ a été inventée pour les besoins de la cause et il existe une telle fonction pour chaque concentration de la matière. Il pouvait donc sembler intéressant de chercher une expression de l'intensité diffusée ne faisant intervenir que des *caractéristiques intrinsèques* des particules. Grâce à la récente théorie des gaz et liquides de Born et Green [16] — supposant que les forces interparticulaires sont des forces centrales — ce résultat peut être atteint en employant la fonction $\Phi(r)$, énergie potentielle mutuelle de deux particules distantes de r. On trouve alors [10], pour des particules à symétrie sphérique,

$$I(h) = I_e(h)\,NF^2(h)\frac{v_1}{v_1-(2\pi)^{\frac{3}{2}}\,\varepsilon\beta(h)}, \qquad (2)$$

où ε est une constante (très voisine de l'unité dans la plupart des cas considérés) et β (h) définie par la transformation de Fourier

$$h\beta(h) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}}\int_{-\infty}^{+\infty}\left(e^{-\frac{\Phi(r)}{kT}}-1\right)r\sin hr\,dr.$$

La formule (2) a été appliquée à l'argon gazeux à 150° K sous 44 atm [11] et fournit alors une courbe un bon accord avec les résultats expérimentaux [12]. De façon tout à fait générale on prévoit (¹) grâce à la forme particulière de l'expression (2) que la courbe $I(h)$ peut présenter, à partir d'une certaine concentration des particules, un maximum pour un angle non nul. Ce maximum devient de plus en plus accentué et se déplace vers les grands angles quand la concentration augmente. Signalons en passant, qu'une étude détaillée des formules (1) et (2) montre que la formule si souvent employée

$$1,23\lambda = 2d_m \sin\theta,$$

où d_m est censé représenter la distance la plus fréquemment réalisée entre proches voisins, ne peut pas être considérée comme une approximation valable (la simple loi de Bragg donne un ordre de grandeur de d_m aussi justifié).

Les résultats expérimentaux permettent maintenant d'atteindre $F^2(h)$ et β (h) [et donc Φ (r)]. Il suffit en théorie de deux courbes relatives à deux concentrations différentes [11].

On peut généraliser simplement [10] les expressions (1) et (2) au cas de particules ne possédant pas la symétrie sphérique quand on suppose que les orientations et les positions des particules sont indépendantes. Le problème général n'est pas encore résolu à notre connaissance.

4. Ensembles denses de particules non identiques. — On peut d'abord chercher à obtenir une formule du genre de celle de Debye. Ceci est possible [17] si l'on introduit des fonctions $P_{kj}(r)$ relatives à un couple composé d'une particule d'espèce k et d'une particule d'espèce j. La formule obtenue permet de calculer l'intensité si l'on se donne un modèle, mais ne permet pas de tirer des renseignements de l'expérience par voie déductive.

Dans une autre voie on peut généraliser la formule (2) en faisant intervenir les $\Phi_{kj}(r)$. L'expression obtenue [17] est toujours très compliquée (même dans le cas simple de deux espèces de particules à symétrie sphérique). On peut cependant espérer déterminer ainsi les fonctions $\Phi_{kj}(r)$, $(k \neq j)$ au moyen d'expériences systématiques et précises. C'est sans doute la complexité de ces formules qui explique l'imprécision des conclusions [13] de l'étude empirique de la diffusion des rayons X par les solutions ioniques.

(¹) G. Fournet (résultat non encore publié).

5. Cas général d'hétérogénéités quelconques de densité électronique. — C'est le cas qui se présente très généralement lors de l'étude des poudres très finement divisées (catalyseurs). Les grains ont des formes et des tailles variables et sont plus ou moins serrés les uns contre les autres, évidemment sans aucune régularité. Il semble difficile de traiter simplement ce cas par le calcul et d'évaluer l'influence des interférences entre particules. Dans le paragraphe 3, c'est l'identité des particules qui entraîne leur arrangement pas trop irrégulier et par conséquent l'apparition de maxima tels que ceux qui sont représentés sur la figure.

Il est infiniment peu probable que de tels phénomènes se produisent dans le cas de poudres tassées. La courbe de diffusion doit donc être toujours décroissante, mais il semble difficile de préciser sa forme. Remarquons que l'on a dit que l'influence de l'aggrégation des particules devait être grande, puisque si elles étaient pressées au point que tout vide disparaisse, la diffusion centrale disparaîtrait complètement. Mais si les particules sont indéformables, le fait qu'elles puissent s'imbriquer les unes dans les autres par tassement implique une coïncidence des formes extérieures des particules voisines, c'est-à-dire une condition contraire à la parfaite irrégularité des particules. Un système quelconque, tassé au maximum, contiendra toujours un grand nombre de cavités et donnera toujours de la diffusion aux petits angles.

Il est malheureux que la théorie soit si peu sûre pour le cas des poudres serrées, qui expérimentalement donnent lieu aux phénomènes les plus facilement enregistrables. De nombreuses applications pratiques ont déjà été faites dans l'étude des catalyseurs, mais on doit être très prudent dans l'interprétation quantitative des courbes de diffusion.

Ce cas, qui nous paraît le plus complexe, avait été considéré au début par Kratky et Porod. Les

calculs les plus poussés publiés par Kratky et Porod [6] sont relatifs à un modèle linéaire (série de feuillets parallèles d'épaisseur variable et à intervalles irréguliers). C'est un cas où, par compression des particules, on arrive à remplir exactement tout l'espace et à supprimer par conséquent toute diffusion centrale. On peut donc prévoir que le tassement des particules a une action marquée sur la courbe de diffusion. C'est ce que ces auteurs ont effectivement montré (mais l'approximation qu'ils ont choisie, contrairement aux calculs dont nous avons parlé, n'est valable que pour les « queues de courbe » et non pour les plus petits angles). Leurs résultats dépendent *essentiellement* du modèle choisi et ne peuvent donc être appliqués valablement qu'à des échantillons dont la structure soit certainement celle de leur modèle. Ceci limite l'étendue et la sécurité de l'utilisation de cette théorie.

Dans le cas où les vides interstitiels sont très espacés et de petites dimensions, les particules perdent leur individualité. D'après le théorème de Babinet, démontré en Optique, l'effet de l'objet et celui de l'objet complémentaire (où les vides sont remplacés par la matière et la matière par le vide) sont exactement les mêmes : si donc les vides sont suffisamment espacés, la courbe de diffusion centrale est régie en première approximation par le rayon de giration moyen des cavités. On voit combien on est loin de la notion de particule. C'est très vraisembalblement ce qui se passe dans le cas du charbon de bois activé, puisque c'est l'activation qui produit en même temps, et l'évacuation des cavités et l'accroissement considérable de la diffusion des rayons X aux petits angles [2].

Dans le cas intermédiaire, où les vides et la matière occupent un volume de même ordre, la théorie des phénomènes de diffusion centrale n'est pas encore faite et il semble difficile pour le moment de faire autre chose que des comparaisons qualitatives entre divers échantillons.

Conclusions. — Actuellement, la théorie de la diffusion aux petits angles des systèmes peu denses est bien connue. Dans ce cas on peut obtenir des *données précises,* à condition que les conditions expérimentales soient correctes. Rappelons qu'il est nécessaire :

1° d'avoir un rayonnement monochromatique;

2° de tenir compte des corrections dues à la constitution géométrique du faisceau de rayons X incidents [3, 7, 14, 15];

3° d'obtenir des valeurs de l'intensité diffusée aux plus faibles angles possibles.

Dans le cas de systèmes denses formés de particules bien définies comme des molécules ou des micelles baignant dans un milieu homogène, la théorie a fait de grands progrès et l'on peut espérer tirer de l'expérience le mode d'arrangement des particules, comme la diffraction par les liquides a permis de déduire l'organisation des molécules dans un liquide.

Par contre, il reste encore un gros travail tant expérimental que théorique pour étudier le cas des poudres très hétérogènes et tassées ou des solides présentant des hétérogénéités de formes quelconques. Mais déjà nous avons la possibilité d'utiliser les rayons X pour des comparaisons qualitatives ou des repérages, sinon des mesures, de l'état de division de la matière.

Manuscrit reçu le 17 mars 1950.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Rayleigh. — *Proc. Roy. Soc.* (London), 1914, A-**90**, 219.
[2] Guinier A. — *Ann. Physique*, 1939, **12**, 161; *J. Chim. Phys.*, 1943, **40**, 133.
[3] Schull et Roess. — *J. Appl. Phys.*, 1947, **18**, 295.
[4] Jellinek M. H., Salomon E. et Fankuchen I. — *Ind. Eng. Chem. Anal. Ed.*, 1946, **18**, 172.
[5] Neugebauer T. — *Ann. Physik*, 1943, **42**, 509.
[6] Kratky O. et Porod G. — *J. Coll. Sc.*, 1949, **4**, 35.
[7] Guinier A. et Fournet G. — *J. Phys.*, 1947, **12**, 345.
[8] Zernicke et Prins. — *Z. Physik*, 1927, **41**, 184.
[9] Debye P. — *Physik Z.*, 1927, **28**, 135.
[10] Fournet G. — *C. R. Acad. Sc.*, 1949, **228**, 1421.
[11] Fournet G. — *C. R. Acad. Sc.*, 1949, **228**, 1801.
[12] Eisenstein et Gingrich. — *Phys. Rev.*, 1942, **62**, 261.
[13] Prins J. A. et Fonteyne R. — *Physica*, 1935, **2**, 1016.
[14] Guinier A. et Fournet G. — *Nature*, 1947, **160**, 501,
[15] Yudowitch K. L. — *J. Appl. Phys.*, 1949, **20**, 174.
[16] Born M. et Green H. S. — *Proc. Roy. Soc.*, 1949, A-**188**, 10. — Green H. S. — *Proc. Roy. Soc.*, 1947, A-**189**, 103.
[17] Fournet G. — *C. R. Acad. Sc.*, 1949, **229**, 1071.

SUR L'EMBRANCHEMENT DE L'ACTINIUM *A* ET LE RAYONNEMENT DE LONG PARCOURS DU DÉPÔT ACTIF DE L'ACTINIUM

Par PAUL AVIGNON.
Institut du Radium, Paris.

Sommaire. — L'embranchement β de l'actinium *A* signalé par Karlik et Bernert est confirmé, et l'énergie du rayonnement α de ^{215}At, mesurée est en bon accord avec celle déterminée par Perlman Ghiorso et Seaborg. L'énergie du rayonnement α de long parcours du dépôt actif est trouvée égale à 9,1 MeV dans un rapport de $0{,}9.10^{-7}$ par désintégration d'Ac*C*.

Karlik et Bernert [1] en travaillant à la chambre d'ionisation ont trouvé un embranchement β de l'actinium *A* d'environ 5.10^{-6} rayons par atome désintégré d'Ac *A*. Cet embranchement conduit à ^{215}At qui se désintègre par rayonnement α; c'est ce dernier rayonnement que Karlik et Bernert ont signalé en lui attribuant un parcours d'à peu près 8 cm dans l'air à 15° C et une pression de 760 mm de Hg, soit 8,4 MeV.

$$\begin{array}{ccccc} & & \mathrm{Ac}A & \xrightarrow{\alpha} & \mathrm{Ac}B \\ & \swarrow\beta & & \swarrow\beta & \\ ^{215}\mathrm{At} & \xrightarrow{\alpha} & \mathrm{Ac}C & \xrightarrow{\alpha} & \mathrm{Ac}C'' \\ & \swarrow\beta & & \swarrow\beta & \\ \mathrm{Ac}C' & \xrightarrow{\alpha} & \mathrm{Ac}D & & \end{array}$$

Meinke, Ghiorso et Seaborg [2] travaillant sur les chaînes latérales des familles radioactives à partir de corps obtenus au cyclotron de Berkeley ont donné plus récemment pour énergie du rayonnement de ^{215}At, une énergie de 8,00 MeV, soit 7,38 cm selon les courbes d'Holloway et Livingston [3]. L'écart notable entre ces deux valeurs et l'imprécision des mesures de Karlik conduisaient à vérifier l'identité de ces deux rayonnements et à préciser l'énergie du rayonnement obtenu à partir des corps radioactifs naturels, de même que la valeur du rapport d'embranchement de l'Ac *A*.

D'autre part, Marie Curie et W. A. Lüb [4], dans un travail fait en 1933, trouvèrent dans le dépôt actif de l'Ac un rayonnement de long parcours compris entre 9 et 10 cm, par la méthode des scintillations. Ce rayonnement était attribué à l'Ac C' avec un rapport 3.10^{-7} rayons par désintégration d'Ac *C* soit de 9.10^{-5} par atome désintégré d'Ac C', en adoptant la valeur 0,32 pour 100 pour le rapport d'embranchement de l'Ac *C* [5].

Pour essayer de préciser ces divers points nous avons donc étudié à partir de source de R Ac, préparées par Mlle Perey à l'Institut du Radium, les rayonnements α de parcours supérieurs au parcours normal de l'Ac C' soit 7,434 MeV.

Méthode expérimentale. — L'ensemble des mesures a été effectué avec chambre d'ionisation suivie d'un amplificateur proportionnel à enregistrement photographique par oscillographe mécanique et à vérification par oscillographe cathodique.

Les deux chambres d'ionisation utilisées, ont été construites et décrites en détail par R. J. Walen dans un travail publié récemment [6].

L'une de ces chambres est, schématiquement cylindrique avec électrode collectrice centrale. Les rayons α arrivent à travers une grille dans la partie efficace de la chambre à peu près parallèlement à l'axe de rotation du cylindre soit normalement aux lignes de champ.

La deuxième chambre présente un angle solide plus grand, un espace efficace plus court, qui a varié de 1 à 2 cm suivant les expériences au lieu de 4,5 cm. Elle est constituée de deux calottes sphériques centrées sur la source. L'une des calottes est la grille d'entrée, l'autre l'électrode collectrice. Dans cette chambre les rayons arrivent parallèlement aux lignes de force; le champ est deux fois plus intense pour éviter la recombinaison.

L'angle solide utilisé, variable suivant les mesures était de l'ordre de 1/100e pour la chambre A et de 1/10e pour la chambre B.

Sources. — Deux sources ont été utilisées particulièrement. Ces sources étaient initialement constituées d'un dépôt de R Ac, sans Ac *X* déposé sur une lamelle d'or de 5 mm de diamètre et scellées par une feuille de mica mince absorbant environ 1 cm des rayonnements étudiés. Cette absorbtion était calculée précisément pour chacun des rayonnements et vérifiée par l'absorption effective pour le rayonnement normal de l'Ac C'.

Les sources étaient mesurées au début de la croissance d'Ac *X* par la méthode de M. Bachelet [7], puis au maximum de leur activité au grand condensateur du service des mesures de l'Institut du Radium par comparaison avec une source de radium. En adoptant dans ces dernières mesures l'équivalent 1 mg de Ra équivalent = 31 mC d'Ac [8], on trouvait pour ces deux sources respec

tivement : 1,12 mC et 7,13 mC, au maximum d'activité, en accord avec les mesures effectuées selon la première méthode moins précise.

Ces sources étaient placées dans les chambres sur des supports mobiles de façon à pouvoir vérifier la position d'apparition du parcours de 7,43 MeV dans l'Ac C'.

Dans chacune des chambres une circulation d'air permettait d'éviter les rayons parasites éventuellement dus à un dégagement d'An. Le mouvement propre des appareils ne dépassait pas le dixième du nombre de rayons mesurés pour chaque groupe α étudié dans les séries d'expériences prises en considération.

Pour éliminer les erreurs dues aux impulsions produites par l'ionisation causée par les protons, les deux groupes furent étudiés séparément; la source était placée de telle sorte que dans chaque cas le trajet moyen des α dans la partie efficace de la chambre soit suffisamment grand pour donner une ionisation nettement supérieure à celle produite au maximum par un proton traversant toute la chambre.

De plus au cours de chaque expérience un étalonnage était effectué avec une source mobile de polonium, afin de tenir compte des fluctuations éventuelles de l'amplification des appareils.

Un champ magnétique (8 000 gauss) éliminait les rayons β, afin de maintenir le bruit de fond à un ordre de grandeur normal.

Résultats. — On a observé la croissance avec

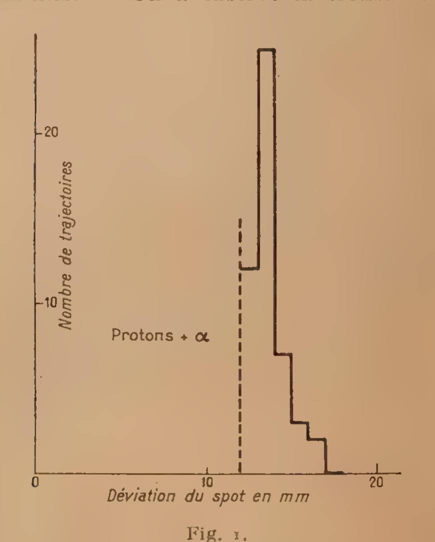


Fig. 1.

l'Ac X et le dépôt actif d'un rayonnement de parcours 7,40 cm ± 0,02 soit 8,04 MeV en proportion de $(2,3 \pm 0,2).10^{-6}$ par désintégration d'Ac A qui montre l'identité du rayonnement observé par Karlik, Bernert et Meinke, Ghiorso, Seaborg (*fig.* 1).

Dans la région de 9 à 10 cm on a trouvé avec l'une et l'autre source un rayonnement de 9,1 cm ± 0,1 dans un rapport de $(0,9 \pm 0,1).10^{-7}$ par désintégration d'Ac C soit 3.10^{-5} par désintégration d'Ac C'. Ces valeurs sont sensiblement plus faibles que celles déduites des expériences de Marie Curie et W. A. Lüb (*fig.* 2).

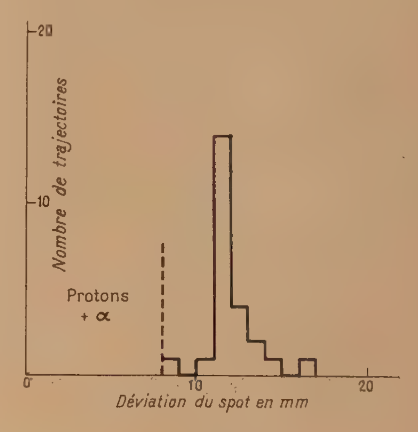


Fig. 2.

S'il existe un autre rayonnement de long parcours, ces expériences indiquent qu'il doit se trouver dans une proportion inférieure à 10^{-8} par désintégration d'Ac C.

La précision sur l'énergie des longs parcours est beaucoup moins bonne. On observe en effet un élargissement de la raie due vraisemblablement aux fluctuations du gain d'amplification des appareils, les mesures devant nécessairement être assez longues.

Discussion. — 1° L'énergie du rayonnement ainsi attribué à ^{215}At permet d'obtenir un bilan d'énergie satisfaisant pour les deux transitions Ac $A \rightarrow$ Ac C. En effet si l'on adopte pour E_β (maxima) du spectre de l'Ac B la valeur obtenue par M. Lecoin [10], soit 0,95 MeV et pour le rayonnement α de l'Ac A la valeur donnée par Rosenblum et M. Curie [11], $E = 7{,}365$ MeV soit pour la transition α : 7,504 MeV, il reste pour l'émission β de l'Ac A environ 400 keV.

La valeur obtenue, par absorption dans l'aluminium, pour la limite supérieure du spectre de l'Ac B par Sargent [9] soit 1,40 MeV augmente encore cette énergie de l'Ac A et la porte à 800 keV.

Cette valeur du rayonnement de ^{215}At est également tout à fait satisfaisante si on l'inclut dans les courbes représentant l'énergie des rayons α (en fonction du nombre de masse de l'émetteur) (*fig.* 3).

2° Pour le rayonnement de 9,1 MeV, on peut

penser l'attribuer à un long parcours de l'AcC' ou de l'AcA, ou éventuellement à ^{215}Em produit par désintégration de ^{215}At; ce dernier corps semble pouvoir être β-instable comme le signalent Perlman, Ghiorso et Seaborg [12].

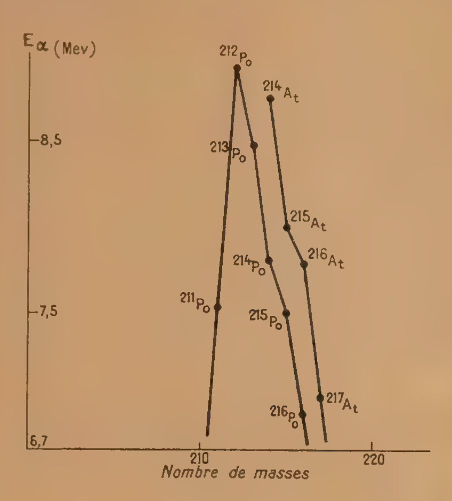


Fig. 3.

Des expériences ultérieures seront poursuivies en vue de trancher entre ces trois hypothèses. Dans les 2e et 3e hypothèses, le parcours observé ne serait pas le même que celui observé par Mlle Lüb et Mme Marie Curie puisque leurs mesures étaient faites à partir de sources de dépôt actif et que la période de l'Ac A est de $1,83.10^{-3}$ s, celle de ^{215}At nécessairement encore plus courte; ces deux derniers corps, donc également ^{215}Em éventuel, ne doivent plus figurer dans de telles sources.

Si par contre le rayonnement est un long parcours, on peut essayer d'obtenir au moins un ordre de grandeur de la probabilité de désintégration de ce rayonnement en le considérant comme émis par l'Ac C'. Pour se faire nous utiliserons la formule établie par Gamow [13]

$$\log_{10}\lambda_\alpha = 21,6693 - 1,191.10^9\frac{Z-2}{v} + 4,084.10^6\sqrt{Z-2}\sqrt{r_0}\,[1-0,001\,j(j+1)],$$

formule dans laquelle λ_α est la constante de désintégration pour le rayonnement α considéré; v la vitesse des particules émises.

Il reste toutefois à faire des hypothèses sur le rayon effectif du noyau émetteur :

$$r_{\text{eff}} = r_0[1-0,001\,j(j+1)]^2.$$

En effet ne connaissant pas expérimentalement la période de l'Ac C' on ne peut pas en déduire exactement le rayon effectif de celui-ci.

On peut prendre comme bases *extrêmes* de calcul :

a. La période de 50 ms attribuée par Perlman Ghiorso et Seaborg à l'Ac C', déduite des courbes : période-énergie α, compte tenu du fait que l'Ac C' a un Z pair et un A impair, donc un

$$r_{\text{eff}} = 0,71.10^{-12}.$$

b. Soit celle attribuant à l'Ac C' le même rayon effectif que le corps le plus voisin le Th C' soit

$$r_{\text{eff}} = 0,90.10^{-12}.$$

Dans la première hypothèse on obtient un

$$\lambda_\alpha \simeq 10^6\ \text{s}^{-1}.$$

Dans la deuxième hypothèse :

$$\lambda_\alpha \simeq 10^{10}\ \text{s}^{-1}.$$

On constate que la première hypothèse (la plus vraisemblable) nous conduit à un λ_α du même ordre de grandeur que celui du premier groupe de long parcours de Ra C' : $\simeq 2.10^5\ \text{s}^{-1}$.

Malheureusement on ne peut connaître la probabilité d'existence du niveau nucléaire correspondant, le rayonnement γ étant évidemment beaucoup trop peu intense pour être détecté.

Je remercie Mme Joliot-Curie d'avoir bien voulu me confier et diriger ce travail. Je remercie également Mlle Perey qui a eu l'obligeance de préparer les sources et de m'aider de ses conseils.

Manuscrit reçu le 27 mars 1950.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] *Z. Physik*, 1944, **123**, 51; *Naturwiss*, 1944, **32**, 44.
[2] *Phys. Rev.*, 1949, **75**, 314.
[3] *Phys. Rev.*, 1938, **54**, 18.
[4] *J. Phys. Rad.*, 1933, **4**, 513.
[5] *Rev. Mod. Phys.*, 1928, **3**, 427.
[6] *J. Phys. Rad.*, 1949, **10**, 95.
[7] *J. Phys. Rad.*, 1942, **3**, 171.
[8] Mme Joliot-Curie. — Les radioéléments naturels, p. 146.
[9] Sargent. — *Canad. J. Research*, 1939, **17**, 82; *Phys. Rev.*, 1938, **54**, 232.
[10] Lecoin M. — *C. R. Acad. Sc.*, 1936, **202**, 1057.
[11] Curie M. et Rosenblum. — *C. R. Acad. Sc.*, 1932, **194**, 1232.
[12] Perlman M., Ghiorso A. et Seaborg G. T. — *Phys. Rev.*, 1950, **77**, 26.
[13] Gamow et Critchfield. — Theory of atomic nucleus and nuclear energy souces, p. 174.

ÉTUDE A LA CUVE RHÉOGRAPHIQUE DE SOURCES D'IONS UTILISÉES EN SPECTROMÉTRIE DE MASSE. DÉTERMINATION DES TRAJECTOIRES

Par RAYMOND MOCH,
Attaché de Recherches au Collège de France,

ETIENNE ROTH,
Ingénieur au Commissariat à l'Energie atomique,

et JEAN SALMON,
Stagiaire de Recherches au Collège de France.

Sommaire. — L'optique de deux sources d'ions dues à A. O. Nier a été étudiée. Sous des conditions d'approximation qui sont rappelées, le tracé à la cuve rhéographique des équipotentielles dans les modèles permet le calcul des trajectoires d'ions dans la source. On a ainsi, comparé les propriétés de focalisation, d'ouverture du faisceau émergeant, dans les deux sources. Le modèle d'une troisième source, conçu d'après les résultats précédents, est également décrit et discuté.

Nous avons mis à profit l'existence au Collège de France d'un traceur automatique d'équipotentielles [1] pour étudier rapidement l'optique de deux sources d'ions utilisées en spectrométrie de masse, et en examiner une modification éventuelle.

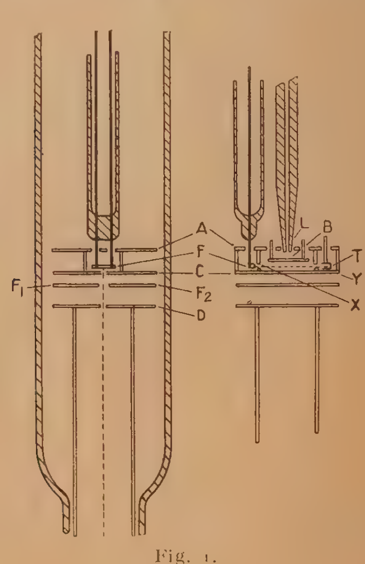


Fig. 1.

Ces deux sources sont dues à Nier [2, 3]. On en trouvera ci-dessus les schémas (*fig.* 1 et 2), reproduits d'après Thode [4].

La source utilisée dans les laboratoires du Commissariat à l'Énergie atomique (source I) comprend une plaque B qui repousse les ions hors de la boîte

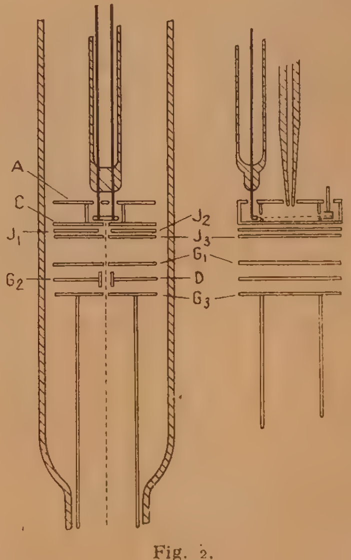


Fig. 2.

à ionisation AC, et deux demi-plaques F_1 et F_2, dites focalisatrices. L'accélération a lieu entre C et D sous l'influence de la haute tension appliquée en C; D est à la masse de l'appareil.

Dans le second type de source (source II, *fig.* 2), les ions sont extraits de la boîte par le champ accélérateur lui-même. Les demi-plaques J_1 et J_2 sont encore dites focalisatrices. Les ions sont accélérés dans les intervalles compris entre C et J_1, J_2 puis entre J_3 et G_1.

La source III a été imaginée à partir des résultats obtenus pour les sources I et II (*voir* plus loin).

Le potentiel choisi pour l'accélération des ions étant de 2 000 V dans les trois cas, les potentiels des différentes électrodes se répartissent comme l'indique le tableau A.

TABLEAU A.

Modèle.	Électrode.	Potentiel des électrodes (V).	Distance entre électrodes ([a]). (mm).	Largeur des fentes ([a]) (mm).
I (*fig.* 4*a*, 4*b*)	B...........	2 000 + 12	BC = 3	C = 0,25
	C...........	2 000	$C - F_1F_2 = 3,5$	$F_1 - F_2 = 1,4$
	F_1F_2........	1 200 ([b])	–	–
	D...........	Masse	$F_1F_2 - D = 6,5$	D = 0,40
II (*fig.* 5*a*, 5*b*)	C...........	2 000	$G - J_1J_2 = 1,5$	C = 1
	J_1J_2........	1 200 ([c])	$J_1J_2 - J_3 = 1$	$J_1J_2 = 1,4$
	J_3...........	1 200 ([c])	$J_3 - G_1 = 8$	$J_3 = 0,25$
	G_1...........	Masse	$G_1 - G_2 = 3$	$G_1 = 0,25$
	G_2D........	» ([d])	$G_2 - G_3 = 3$	$G_2D = 1,4$
	G_3...........	»	–	$G_3 = 1$
III (*fig.* 6*a*, 6*b*)	C...........	2 000	$GF_1 = 5$	G = 1
	F_1...........	Masse	$F_1 - D = 7$	$F_1 = 1,4$
	D...........	»	$D - G_1 = 4$	D = 0,4
	G_1...........	2 000	$G_1 - G_2 = 4$	$G_1 = 1,4$
	G_2...........	Masse	$G_2 - G_3 = 1$	$G_2 = 0,6$
	G_3...........	»	–	$G_3 = 1$

([a]) Le modèle utilisé à la cuve rhéographique était sensiblement à l'échelle 80. Les relevés effectués à l'aide du traceur automatique d'équipotentielles n'ont pu être reproduits ici, le nombre des courbes tracées (de 150 à 200 par modèle) rendant illisible une réduction photographique.

([b]) F_1 et F_2 sont deux demi-plaques qui peuvent être portées séparément à des potentiels quelconques compris entre 1 200 — 100 et 1 200 + 100 V. On peut aussi mettre l'une d'entre elles à la masse, et dévier ainsi suffisamment le faisceau pour qu'il ne pénètre plus dans le spectromètre.

([c]) Nier [3] porte ces électrodes à 1 600 V au minimum, Thode [4] à 1 750 ou 1 800 V. J_1 peut être portée à un potentiel quelconque compris entre 1 200 — 40 et 1 200 + 40 V.

([d]) D peut être portée à 800 V pour interrompre l'émission de la source.

Pour donner au pinceau d'électrons servant à l'ionisation des gaz une forme et une direction convenables, la source est habituellement placée dans l'entrefer d'un aimant dont le champ est sensiblement parallèle à la droite FT (*fig.* 1) joignant le filament au piège à électrons. L'intensité de ce champ varie de 20 à 1 800 gauss suivant les auteurs [2, 3, 9].

Le problème qui nous intéresse est de savoir si la fente de sortie (D ou G_3) de ces sources peut jouer le rôle d'objet pour la lentille magnétique du spectromètre, et de connaître l'ouverture du faisceau qui pénètre dans celui-ci.

Dans ce but, nous nous sommes proposé de comparer des trajectoires d'ions correspondant à des conditions initiales analogues dans les trois sources : positions homologues, même inclinaison de la trajectoire, vitesse négligeable.

La figure 3 est la photographie du modèle réalisé pour l'étude de ces sources à la cuve rhéographique.

Dans notre analyse, nous avons négligé : d'une part, l'influence du champ magnétique de l'aimant; d'autre part, la charge d'espace. Les conditions initiales choisies permettent de supposer les trajectoires paraxiales et de faire les calculs en approximation de Gauss, ce que justifient *a posteriori* les résultats.

De plus, les courbes donnant le potentiel le long de l'axe (*fig.* 4 *a*, 5 *a* et 6 *a*) peuvent être décomposées en segments sensiblement linéaires ([1]). Ce cas est particulièrement favorable pour appliquer au calcul des trajectoires la méthode de Gans (*cf.*, par exemple [6] ([2]).

Les conditions initiales choisies pour les trois modèles sont :

a. champ accélérateur nul à l'origine des trajectoires;

([1]) Les points expérimentaux (150 à 200 par courbe) ont une dispersion assez faible pour être recouverts par le trait du dessinateur. On ne les a donc pas fait figurer.

([2]) Les trajectoires issues d'un même point de l'axe se déduisent toutes de l'une d'elles par affinité. Il suffit donc d'en calculer une pour déterminer les propriétés du système relativement à ce point.

b. pente de la trajectoire à son origine : 0,025; ce qui correspond sensiblement à l'angle sous lequel le diaphragme de sortie de la source est vu du point O, origine de la trajectoire.

Les figures 4 *b*, 5 *b* et 6 *b*, dans lesquelles les ordonnées ont été agrandies quatre fois, représentent les trajectoires ainsi obtenues. Les échelles des abscisses sont les mêmes dans toutes les figures.

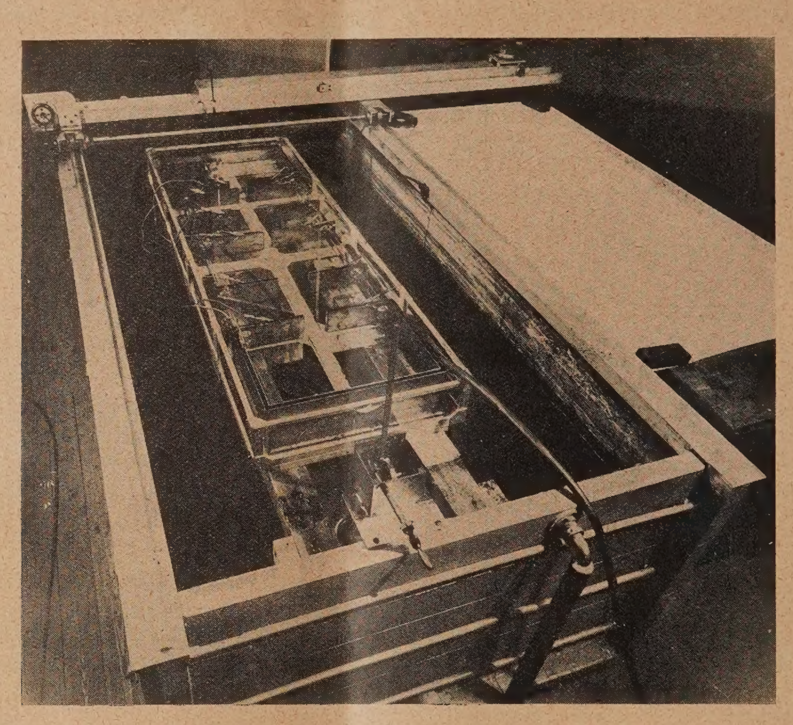


Fig. 3.

Les résultats relatifs à la source I (*fig.* 1) sont données par les figures 4 *a* et 4 *b*.

Le potentiel diminue de 0,6 pour 100 à l'intérieur de la boîte à ionisation (champ nul); puis il décroît à peu près linéairement jusqu'à la fente de sortie de la source, le champ dans cette région variant au plus de 0,3 pour 100.

La trajectoire traverse l'axe au niveau de la plaque C, puis s'en écarte régulièrement et heurte le diaphragme de sortie. Dans la région de champ nul, la trajectoire est rectiligne et dirigée suivant la vitesse initiale; dans la zone de champ sensiblement constant, elle prend une allure parabolique.

On voit que les demi-plaques F_1 et F_2, portées à des tensions choisies d'après les valeurs expérimentales les plus favorables, ne perturbent pas la répartition de potentiel. Dans ce cas, l'effet de convergence sur la fente de sortie, attribué par certains auteurs [5] à F_1 et F_2 n'apparaît nullement dans nos résultats. Mais il est exact que l'introduction d'une petite différence de potentiel entre F_1 et F_2 sert à faire pivoter l'ensemble des équipotentielles, donc la trajectoire.

Les figures 5 *a* et 5 *b* sont relatives à la source II (*fig.* 2).

On voit que le potentiel à l'intérieur de la boîte à ionisation décroît notablement plus vite que dans le cas précédent, ce qui est lié à la pénétration des équipotentielles à l'intérieur de la boîte. Entre la sortie C de la boîte à ionisation et les demi-plaques J_1 et J_2, le potentiel décroît à peu près linéairement, de même qu'entre J_3 et G_1. Au delà de G_1, il est devenu négligeable. Entre les demi-plaques, J_1, J_2 et la plaque J_3 apparaît la seule perturbation notable : la courbe du potentiel le long de l'axe subit une double inflexion qui raccorde les deux zones linéaires qu'on vient de signaler, la pente de la première étant nettement plus forte que celle de la seconde.

Par suite de la pénétration des équipotentielles dans la boîte à ionisation, les ions qui s'écartaient initialement de l'axe changent de direction avant d'avoir atteint la plaque C. et les trajectoires coupent l'axe sous un angle très petit dès la sortie de la boîte. Elles sont encore très peu inclinées lorsque les ions sont accélérés entre C et J_1, J_2. Dans la région

comprise entre les plaques J_1, J] et J_3, portées au même potentiel, les ions vont sensiblement en ligne droite; ils sont à nouveau accélérés dans la seconde zone linéaire, mais sont désormais assez rapides pour que leurs trajectoires soient peu courbées. L'inclinaison de celles-ci, sans diminuer, demeure néanmoins assez faible pour qu'elles traversent la fente de sortie tout près de l'axe. J_1 et J_2 servent encore à faire pivoter l'ensemble des équipotentielles. On a vu le rôle de D (*cf.* tableau A).

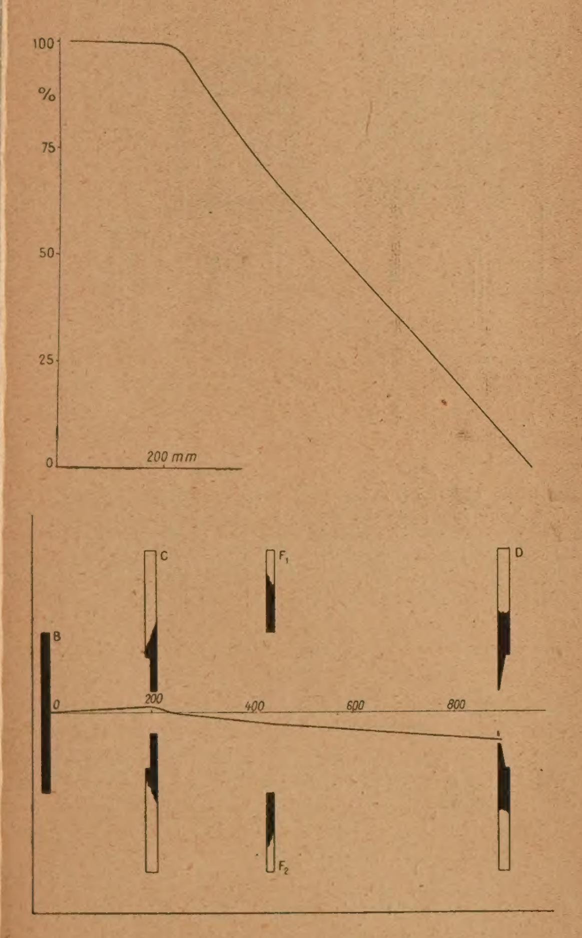


Fig. 4 *a* et *b*.

Les figures 6 *a* et 6 *b* se rapportent à la source III. Celle-ci se compose de deux parties : la première (plaques CF_1, F_2, D) donne une répartition de potentiel analogue à celle de la source I, tandis que la seconde plaque (G_1, G_2, G_3) constitue une lentille destinée à donner au voisinage de la sortie de la source une image I du point O qui pourra être utilisée comme objet pour la lentille magnétique du spectromètre. Les ions formés au voisinage de O convergeront au voisinage de I.

Pour déterminer les caractéristiques de la lentille utilisée, nous avions admis que les formules données par Chanson [8], seraient encore valables pour un système dit « à deux dimensions ». Cette supposition a

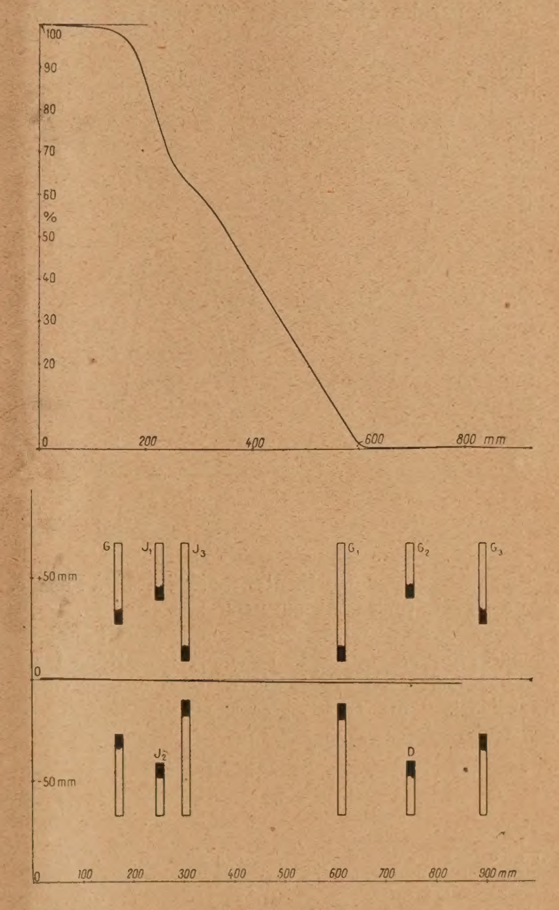


Fig. 5 *a* et *b*.

été vérifiée dans le cas particulier qui nous intéresse : on obtient bien le point de convergence à l'endroit prévu. La trajectoire d'ailleurs s'est notablement écartée de l'axe entre I et O, et le faisceau sortant est plus divergent que le faisceau original.

Pour conclure, comparons les trajectoires, dans ces sources, d'une particule émise en direction du bord du diaphragme de sortie :

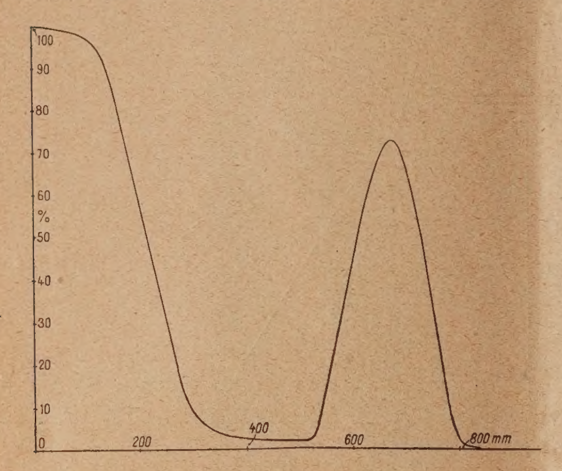
dans la source I, la trajectoire heurte la dernière plaque, et est donc inutilisable;

dans la source II, elle émerge sous un angle très faible;

dans la source III, elle émerge sous un angle supérieur à l'angle initial.

La source I est donc moins lumineuse que les sources II et III.

La source II fournit un pinceau d'ions moins divergent que la source III, ce qui réduira les pertes causées par les diaphragmes ultérieurs et les effets des aberrations de la lentille du spectromètre. Il avait déjà été signalé [4] que la source II avait un meilleur rendement que la source I. Ceci aurait pu découler de la suppression de la plaque B qui crée, dans la source I, un obstacle à l'arrivée des gaz jusqu'à la région où ils sont ionisés. Indépendamment de cette possibilité, il semble donc que la source II soit dotée d'une meilleure optique.



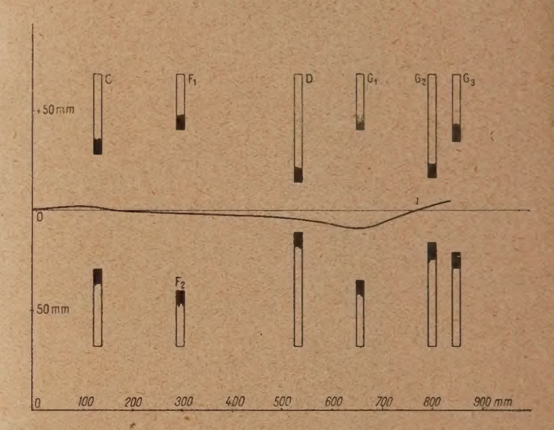


Fig. 6 *a* et *b*.

La source III peut présenter un intérêt si, à l'usage, elle se révèle plus lumineuse que la source II.

Rappelons que les conditions mêmes de l'analogie rhéographique, ainsi que les approximations faites dans les calculs, interdisent d'attribuer une valeur quantitative au tracé apparemment très précis des trajectoires.

Nous tenons à remercier M. L. Leroux, du Service des Accélérateurs du C. E. A. et le Bureau de Calcul du Centre de Châtillon pour l'aide qu'ils nous ont apportée pour relever les équipotentielles et calculer les trajectoires.

Manuscrit reçu le 18 mars 1950.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Lehmann G. et Moch R. — *Archive originale du Service de Documentation du C. N. R. S.*, n° 280; *Bulletin Analytique du C. N. R. S.*, vol. IX, n° 11, Ire Partie, 9-36281.

[2] Graham R. L., Harkness A. L. et Thode H. G. — *J. Scient. Instr.*, 1947, **24**, 119-128.

[3] Nier A. O. — *Rev. Sc. Instr.*, 1947, **18**, 389-411.

[4] Thode H. G. et Shields R. B. — *Reports on Progress in Physics*, **12**, 1 à 21.

[5] Bertein F. et Vastel J. — *Annales de Radioélectricité*, 1949, **4**, 269-278.

[6] Zworykyn, Morton, Ramberg, Hillier et Vance. — Electron Optics and the Electron Microscope, John Wiley ans Sons, 1945, p. 412.

[7] Cotte. — *Thèse de Doctorat*, Paris, 1938 et *Ann. Phys.*, 1938, **10**, 833.

[8] Chanson. — *Thèse de Doctorat*, Paris, 1947.

[9] Barnard G. P. — *Nature*, 1949, n° 1463, **164**, 283-285.

Le Gérant : Maurice Blondin. 137411 Imp. Gauthier-Villars, 55, quai des Grands-Augustins, Paris. — 1950.